

Wydział Fizyki i Informatyki Stosowanej AGH

Katedra Fizyki Ciała Stałego

e-mail:stobieck@agh.edu.pl

Recenzja

pracy doktorskiej mgr inż. Kingi Aleksandry Lasek

Optymalizacja mechanizmów fizycznych indukujących prostopadłą orientację wektora namagnesowania w heterostrukturach typu magnetyczne złącze tunelowe

Promotor: prof. dr hab. Piotr Przysławski

Promotor pomocniczy: dr inż. Leszek Gładczuk

Wybór tematu i cel pracy

Praca doktorska pani mgr inż. Kingi Aleksandry Lasek dotyczy układów wielowarstwowych wytwarzanych metodą epitaksji z wiązek molekularnych (Molecular Beam Epitaxy – MBE), zbudowanych z cienkich warstw metali przejściowych takich jak: Co i $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$, rozdzielonych cienką warstwą izolatora MgO, które następnie były charakteryzowane pod kątem uzyskania optymalnych parametrów magnetycznych dla zastosowań jako magnetyczne złącza tunelowe (Magnetic Tunnel Junctions – MTJs).

Do uzyskania heterostruktur typu ferromagnetyk /izolator/ferromagnetyk (FM/I/FM), typowych dla złącza MTJ, doktorantka przeprowadziła badania wpływu grubości warstw ferromagnetycznej i sąsiadujących z nią warstw Au i MgO na powstanie prostopadłej anizotropii magnetycznej niezwykle istotnej dla złącza stosowanego jako komórka pamięci PMA-STT-RAM (Perpendicular Magnetic Anisotropy – Spin Transfer Torque – Random Access Memory) lub STO (Spin Torque Oscillator).

Doktorantka włożyła bardzo duży nakład pracy w hodowanie ekstremalnie cienkich warstw metodą MBE oraz w badania zjawisk interfejsowych, głównie odpowiedzialnych za anizotropię prostopadłą warstw ferromagnetycznych (Co i $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$), posługując się czułą na te zjawiska metodą rezonansu ferromagnetycznego (FMR).

Pani mgr Lasek nie wykonała strukturyzacji próbki w celu otrzymania złącza MTJ i nie przeprowadziła pomiarów tunelowej magnetorezystancji (TMR), choć tradycja tego typu badań w Instytucie Fizyki PAN jest od początku lat 90. minionego stulecia, warto tu wspomnieć pionierską pracę *J. Nowak, J. Rauluszkiwicz Spin dependent electron tunneling between ferromagnetic films, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 109, 79 (1992)*, która została wcześniej opublikowana niż bardzo znana, wielokrotnie cytowana praca *J. S. Moodera, et al. Large Magnetoresistance at Room Temperature in Ferromagnetic Thin Film Tunnel Junctions, Phys. Rev. Lett. 74, 3273 (1995)*.

Podsumowując ocenę celów rozprawy doktorskiej pani mgr Lasek, pragnę podkreślić, że zarówno próbki jak i metody badawcze jakie stosowała są bardzo nowoczesne i naukowo aktualne.

Treść pracy i uwagi ogólne

Przedstawiona rozprawa doktorska liczy 120 stron i została podzielona na dwie zasadnicze części, pierwsza „Część teoretyczna i przegląd literatury” druga „Część doświadczalna”, jest to bardzo tradycyjny układ pracy doktorskiej, dziś już rzadko stosowany w przypadku gdy osoba doktoryzująca się, przypadek pani mgr Lasek, jest współautorem 4. publikacji ujętych w bazie JCR (Journal Citation Reports). W takim przypadku wskazany jest raczej taki układ pracy doktorskiej kiedy autor(-ka) rozprawy skupia się na opisie tych wątków, które z natury ograniczonej objętości publikacji nie zostały w nich poruszone.

Praca jest stricte eksperymentalna a wyniki pomiarów są interpretowane w oparciu o znane modele przy zastosowaniu przez doktorantkę własnych technik numerycznych dopasowania krzywych doświadczalnych do użytych modeli.

W części pierwszej, w rozdziale „Podstawy działania urządzeń spintronicznych” opartym na solidnie zrobionym przeglądzie literatury znajdujemy opis zjawisk fizycznych takich jak: TMR, GMR, STT, polaryzacja spinowa, choć autorka dysertacji się nimi nie zajmowała, znajdujemy jedynie uzasadnienie na ich opis ze względu na zastosowania złącz tunelowych na pamięci STT-RAM i spinowe oscylatory. W rozdziale drugim, lepiej nawiązującym do badań eksperymentalnych zrealizowanych przez doktorantkę, dyskutuje ona podstawy fizyczne pochodzenia anizotropii magnetycznej w cienkich warstwach. Omawia w nim modele anizotropii w układach ferromagnetyk/niemagnetyczny metal, ferromagnetyk/niemagnetyczny tlenek oraz ferromagnetyk/materiał organiczny. W rozdziale trzecim omawia zastosowane w badaniach techniki pomiarowe: spektroskopie rezonansu ferro-magnetycznego FMR, metodę pomiaru namagnesowania i pętli histerezy za pomocą magnetometru SQUID-owego oraz rentgenowską spektroskopie fotoelektronów XPS. W rozdziale czwartym, w oparciu o klasyczny model precesji, doktorantka wyprowadza warunki rezonansu dla namagnesowania w płaszczyźnie i w kierunku prostopadłym do płaszczyzny. Niestety nie wyprowadza i nie podaje postaci funkcji na zależności kątowe pola rezonansowego, które są podstawowymi zależnościami analizowanymi przez doktorantkę w części doświadczalnej rozprawy. Nie znajdujemy w części teoretycznej ani w eksperymentalnej dyskusji kształtu linii rezonansowej oraz jej szerokości, brak więc ważnych informacji o tłumieniu istotnym parametrze oceniającym dynamikę przełączania magnetyzacji.

Część eksperymentalna zaczyna się rozdziałem piątym, w którym pani mgr Lasek omawia nanoszenie warstw metodą wzrostu epitaksjalnego z komórek efuzyjnych bądź działa elektronowego w warunkach ultra wysokiej próżni. Jakość warstw buforowych Mo i Au, warstw magnetycznych Co i $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$ oraz warstwy MgO jest kontrolowana dyfrakcją odbiciową wysoko energetycznych elektronów (RHEED). Ostre prążki dyfrakcyjne potwierdzają monokrystaliczny wzrost warstw buforowych Mo i Au oraz dolnych warstw Co i $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$, niestety warstwa MgO jest polikrystaliczna co powoduje zdefektowany wzrost górnych warstw magnetycznych (rozmyte spoty dyfrakcyjne). Obrazy RHEED potwierdza obraz przekroju poprzecznego przez układ wielowarstwowy wykonany w technice wysoko rozdzielczej mikroskopii elektronowej (HR-TEM). Zastosowanie klinowej zmiany grubości podczas nanoszenia warstw umożliwiło doktorantce precyzyjne badanie zmian anizotropii magnetycznej.

W rozdziale szóstym doktorantka dyskutuje wpływ monowarstwy Au wprowadzonej do interfejsu Co/MgO, na anizotropię magnetyczną kobaltu w heterostrukturze Au(111)/Co(0001)/ monowarstwa Au/MgO/Au. Zmiany efektów anizotropowych bada w funkcji grubości warstwy Co, mierzonych na strukturach klinowych, w których grubość warstw Co zmieniała się od 0 do 3 nm. Uzyskane wyniki porównuje z strukturami referencyjnymi Au/Co(0-3 nm)/MgO/Au oraz Au/Co(0-3 nm)/Au. Na podstawie analizy kątowych zależności pola rezonansowego w funkcji grubości warstwy Co, wyznaczonymi z pomiarów FMR (nie podaje częstotliwości, dla której pomiar jest wykonywany), wyznacza stałe anizotropii: K_{eff} i magnetokrystaliczną K_4 oraz stałe anizotropii powierzchniowej K_s i objętościowej K_v . Doktorantka wykazała, że układ Au/Co/Au wykazuje przejście do anizotropii prostopadłej już dla 2nm Co, podczas gdy układy Au/Co/monowarstwa Au/MgO/Au dla 1.8 nm a Au/Co/MgO dla 1.3 nm. Zgodnie z tą tendencją największą anizotropię powierzchniową K_s wykazuje układ Au/Co/Au. Ciekawa jest zmiana zależności stałej magnetokrystalicznej K_4 od grubości Co, z której wynika że wkład magnetokrystaliczny silnie zależy od grubości Co i poniżej 1.5 nm Co przestaje być istotny. Choć doktorantka nie podaje parametrów dopasowania funkcji liniowej (rys.6.4) widać płynne monotoniczne malenie stałej K_4 ze wzrostem grubości warstwy Co dla przypadku układu Au/Co/Au, a silnie zaburzone dla Au/Co/monowarstwa Au/MgO/Au o czym świadczy dobry epitaksjalny wzrost w przypadku grubych warstw Au (przypadek struktury Au/Co/Au). Moim zdaniem szorstkość morfologiczna wynikająca z polikrystaliczności warstwy MgO i nieciągłość monowarstwy Au (efekt „piningowych” oddziaływań dipolowych typu „orange peel”) są silniejszą przyczyną zmian anizotropii powierzchniowej niż wiązania Co-O. Nie została w przekonujący dla mnie sposób omówiona analiza widm XPS dla wiązań Co-O, a w szczególności udziały procentowe zmian tlenu związanego z kobaltem wynikające z wprowadzenia monowarstwy Au pomiędzy Co i MgO (proszę o dyskusje na obronie). Również nie rozumiała jest dla mnie analiza zależności kątowej pola rezonansowego przedstawionej na rys. 6.6 na przykładzie próbki Au/Co(dCo = 2.2 nm)/Au proszę o wyjaśnienia na obronie.

Bardzo ciekawe i pionierskie są badania zmian anizotropii magnetycznej ultra cienkich warstw Co pokrytych warstwą węglowodorową pochodzącą od oleju próżniowego, dyskutowane w rozdziale siódmym rozprawy. Doktorantka wykazała, że oddziaływanie pomiędzy organicznymi molekułami oraz atomami metalu, prowadzi do wzrostu energii powierzchniowej warstwy, co przyczynia się do powstania prostopadłej anizotropii magnetycznej. Analizując wyniki badań zauważam różnice co do rzędu w wartościach pola rezonansowego podobnych co do grubości warstw Co w układzie Au/Co/Au (porównaj wartości H_{res} na rys.6.2 i 7.4), proszę o wyjaśnienie. Wyznaczenie wartości sumarycznej anizotropii powierzchniowej (od dwóch interfejsów górnego i dolnego) $K_s = 1.74 \pm 0,05 \text{ erg/cm}^2$ zastanawia dlaczego za K_s dolnego interfejsu przyjęto wartość $K_{s1} = 0.87 \pm 0.05 \text{ erg/cm}^2$, czy za pracą [Spe_1995]?, podana wartość jest akurat połową wartości sumarycznej, czy to zbieg okoliczności? Na wykresie rys. 7.5 podobnie jak i na wykresie rys. 2.5 grubość Co podano w cm domyślam się, że to błąd. Niskotemperaturowe pętle histerezy rys. 7.6 wskazują na różne koercje od warstwy powierzchniowej odmienionej warstwą węglowodorową od jej części objętościowej, szkoda, że nie porównano z układem Au/Co/Au.

Recenzentowi trudno się zgodzić z wnioskami w par. 7.5 cytuje: „Redystrybucja ładunku na międzypowierzchni, spowodowana oddziaływaniem pomiędzy orbitalami węglowodoru zlokalizowanymi na powierzchni a poziomem 3d Co, prowadzi do pojawienia się silnych dipoli na powierzchni metalu....” co nie wynika ani z pomiarów magnetycznych, a w szczególności z pomiarów

XPS. Należy więc traktować jako hipotezę zmianę powierzchniowej anizotropii poprzez spontanicznie wytworzone pole elektryczne od dipoli zlokalizowanych na interfejsie Co/H-c.

W rozdziale ósmym, doktorantka dyskutuje wyniki badań wpływu grubości warstwy (bariery tunelowej) MgO na zmiany anizotropii magnetycznej układu typu kompletne złącze tunelowe. Au (20 nm) /Co_{0.9}Fe_{0.1} (1.4 nm)/Au/MgO(t_{MgO})/monowarstwa Au/Co_{0.9}Fe_{0.1} (1.4 nm)/Au(10 nm). Dyskusja wyników opiera się na badaniu układu zmian anizotropii prostopadłej dolnej warstwy Co_{0.9}Fe_{0.1} (1.4 nm) gdyż górna warstwa ma anizotropię w płaszczyźnie. Doktorantka zaobserwowała efekt reorientacji kierunku namagnesowania warstwy dolnej (referencyjnej) Co_{0.9}Fe_{0.1} z kierunku prostopadłego do występowania z maleniem grubości MgO dwóch składowych prostopadłej i płaszczyznowej z równoczesnym wzrostem anizotropii magnetokrystalicznej K_4 dla grubości MgO poniżej 8 nm. Wzrostowi dodatniej wartości anizotropii K_{eff} powyżej 0.8 nm MgO towarzyszy wzrost anizotropii powierzchniowej górnego interfejsu Co_{0.9}Fe_{0.1}/Au/MgO wynik jest fizycznie uzasadniony zmianami K_{s2} w funkcji grubości MgO dla układu kompletnego złącza (S_{MTJ}) warstwy dolnej (R_B) i złącza o grubości MgO 3 nm (R_{MTJ}).

W dyskusji zależności kątowych pola rezonansowego w zależności od grubości MgO (rys. 8.8) pani mgr Lasek stwierdza brak wymiennego sprzężenia poprzez przekładkę MgO. Zbyt lakonicznie opisuje wyliczone zależności kątowe, nie podaje wartości całki wymiany odwołuje się do wzoru (2.8) nie uwzględniającego w postulowanej energii całkowitej wkładu od energii wymiennego sprzężenia międzywarstwowego (IEC), proszę o przedyskutowanie tego zagadnienia w trakcie obrony, odnosząc do cytowanych prac w rozprawie [Bru_1995, Slo_1995, Kat_2006, Vin_2002] oraz prac: A. Koziół-Rachwał et al. JAP 115, 104301 (2014) i W. Skowroński et al. JAP 107, 093917 (2010).

Rozprawę doktorską pani mgr Lasek kończy podsumowaniem, w którym słusznie zwraca uwagę na konieczność dalszych prac eksperymentalnych jakie zamierza podjąć w związku z nowymi ciekawymi problemami jakie pojawiły w trakcie badań, do nich między innymi należy zagadnienie anizotropii magnetycznej struktur [Co_{0.9}Fe_{0.1}/Ni]_n, które opisała w dodatku A.

Uwagi szczegółowe

Układ treści pracy jest prawidłowy, rozdziały zostały ułożone logicznie, forma graficzna bardzo staranna. Brak w pracy poważniejszych uchybień językowych. Choć autorka rozprawy starała się być staranna w redakcji pracy, nie uniknęła następujących błędów redakcyjnych oraz niezręcznych sformułowań fizycznych:

- str. 12, STT to transfer momentu siły nie momentu pędu,
- str. 17, rys 1.6 brak opisów osi x i y, brak danych na osi x,
- str. 17, niezrozumiałe i nieprawdziwe fizycznie zdanie "Dobry kontakt elektryczny kanału przewodnictwa o symetrii Δ_1 z obiema elektrodami (i co za tym idzie duża wartość efektu TMR) może być osiągnięty wyłącznie w konfiguracji równoległej namagnesowań."
- str. 28, rys.2.5, grubość Co powinna być w nm, nie w cm, wartość odcięcia równa się $K_v - 2\pi M_s^2$,
- str. 48 nie znalazłem rys.4.1,
- str. 60, od tej strony pojawiają się wyniki pomiarów FMR, należało podać częstotliwość dla której pomiary zostały przeprowadzone,
- str. 62 na rys. 6.3 moim zdaniem grubość krytyczna 2.2 nm przejścia z anizotropii w płaszczyźnie do prostopadłej odpowiada przypadkowi struktury Au/Co/Au, zostały więc zamienione w legendzie oznaczenia, które powinny być zgodne z oznaczeniami na rys. 6.4,

- str. 65 „Średnia wartość K_4 wzrasta od $-0.9 \cdot 10^5$ erg/cm³ do $-6 \cdot 10^5$ erg/cm³ wraz ze wzrostem grubości warstwy Co od $d_{Co} = 0.9$ do 3 nm (rys.6.4 b)” nie wzrasta lecz maleje,
- str. 72 w literaturze dyfrakcji promieniowania X zaobserwowane prążki pochodzą od interferencji i lepiej nazywać je od nazwiska odkrywcy „Kiessig fringers”,
- str. 76 grubość Co powinna być w nm nie cm.

Ocena pracy

Podsumowując stwierdzam, że praca doktorska mgr inż. Kingi Aleksandry Lasek „Optymalizacja mechanizmów fizycznych indukujących prostopadłą orientację wektora namagnesowania w heterostrukturach typu magnetyczne złącze tunelowe” zawiera bardzo interesujące i oryginalne wyniki, doktorantka wykazała się dużą wiedzą, zdolnościami eksperymentalnymi i wnikliwą interpretacją wyników pomiaru.

Z całą stanowczością chciałbym podkreślić, że cel pracy: wytworzenie epitaksjalnych heterostruktur typu FM/I/FM z magnetyczną anizotropią prostopadłą został osiągnięty. Na szczególne podkreślenie zasługują następujące oryginalne wyniki:

- wytworzenie bardzo dobrej jakości warstw epitaksjalnych z precyzją grubości równą monowarstwie atomowej,
- określenie krytycznych warunków indukowania prostopadłej anizotropii magnetycznej w heterostrukturach: Au/Co/Au, Au/Co/MgO, Au/Co/Au/MgO, Au/Co_{0.9}Fe_{0.1}/MgO/Co_{0.9}Fe_{0.1}/Au i [Co_{0.9}Fe_{0.1}/Ni]_n,
- pionierskie prace nad modyfikowaniem stanów powierzchniowych molekułami organicznymi,
- wykorzystanie kątowych pomiarów rezonansu ferromagnetycznego i magnetometrii SUID-owej do wyznaczania anizotropii: efektywnej, magnetokrystalicznej, objętościowej i powierzchniowej,
- zaadoptowanie spektroskopii XPS do analizy stanów powierzchniowych tlenków kobaltu.

Bardzo wysoko oceniam wyniki badań pani mgr Lasek, moje szczególne uznanie za staranny i systematyczny eksperyment oraz wnikliwą analizę teoretyczną. Wyżej wymienione uwagi krytyczne czy wytknięte błędy według mojej oceny nie obniżają wysokiej wartości fizycznej przeprowadzonych badań, częściowo zresztą opublikowanych.

Pragnę podkreślić, że doktorantka ma na swoim koncie cztery współautorskie publikacje indeksowane w bazie JCR z tego w jednej opublikowanej w J. Magn. Magn. Mat. (2017) jest pierwszym autorem. Opublikowane wyniki badań zostały wykorzystane w przedłożonej do recenzji rozprawie.

Wniosek końcowy

Na podstawie przeprowadzonej oceny rozprawy doktorskiej stwierdzam, że spełnia ona wymagania ustawy z dnia 14 marca 2003 r. o stopniach naukowych i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki (Dz. U. Nr 65, poz. 595, z późn. zm.) i stawiam wniosek do Rady Naukowej Instytutu Fizyki PAN w Warszawie o dopuszczenie pani mgr inż. Kingi Aleksandry Lasek do publicznej obrony.

