

Prof. dr hab. Tomasz Story
Instytut Fizyki PAN w Warszawie

Recenzja rozprawy doktorskiej mgr Małgorzaty Błaszyk
pod tytułem

„Właściwości elektryczne i magnetyczne układów wielowarstwowych Ni-Fe/Au/Co/Au
otrzymywanych metodami rozpylania jonowego i naparowania termicznego”.

Praca doktorska mgr Małgorzaty Błaszyk poświęcona jest doświadczalnym badaniom ferromagnetycznych układów wielowarstwowych Ni-Fe/Au/Co/Au, w których ultra cienkie ferromagnetyczne warstwy permaloju (Ni-Fe) oraz Co rozdzielone są niemagnetyczną przekładką Au. Tematyka pracy dotyczy ważnego kierunku współczesnych badań materiałów magnetycznych jakim są wielowarstwy typu ferromagnetyk/niemagnetyk - jeden z kluczowych układów materiałowych spintroniki - nowego działu fizyki i technologii materiałów magnetycznych. Szczególnie istotne są tu dwa efekty: zjawisko gigantycznego magnetooporu GMR i tzw. anizotropia prostopadła, obserwowane np. w modelowych wielowarstwach Fe/Pt czy Co/Au. Odkrycie tych efektów w metalicznych układach cienkowarstwowych stanowiło przełom w technologii zapisu magnetycznego na twardych dyskach magnetycznych. Praca doktorska M. Błaszyk podejmuje ambitny plan doświadczalnej weryfikacji ważnych koncepcji fizycznych efektu GMR na przykładzie wielowarstw Ni-Fe/Au/Co/Au, w których odpowiedni dobór grubości poszczególnych warstw pozwala na wytworzenie układu z prostopadłą anizotropią jednej z warstw ferromagnetycznych (Co) a typową anizotropią z łatwą płaszczyzną magnesowania w drugiej warstwie ferromagnetycznej (Ni-Fe).

Zasadniczym celem pracy doktorskiej mgr Małgorzaty Błaszyk było określenie wpływu mikroskopowych parametrów charakteryzujących strukturę krystaliczną i parametry elektryczne poszczególnych warstw na elektryczne i magnetyczne właściwości układu wielowarstwowego, przede wszystkim na efekt GMR. Realizacja tych ambitnych zamierzeń wymagała podjęcia zadań technologicznych (otrzymanie dobrej jakości układów warstwowych Ni-Fe/Au/Co/Au w różnych warunkach technologicznych i w szerokim zakresie grubości warstw Co), wykonania wszechstronnej charakteryzacji struktury krystalicznej i morfologii powierzchni poszczególnych warstw, a także doświadczalnego zbadania właściwości elektrycznych (oporność właściwa, efekt GMR, anomalny efekt Halla) i magnetycznych (pętle histerezy magnetycznej) tych wielowarstw. Z zadań tych doktorantka wywiązała się bardzo dobrze.

Badane ferromagnetyczne układy wielowarstwowe zostały wytworzone metodą rozpylania magnetronowego oraz naparowania termicznego w Instytucie Fizyki Molekularnej PAN w Poznaniu. Praca doktorska była realizowana pod kierownictwem promotora doc. dr. hab. T. Lucińskiego w Środowiskowym Laboratorium Fizyki Powierzchni i Spektroskopii Tunelowej IFM PAN. Zasadnicze pomiary galwanomagnetyczne, magnetometryczne oraz mikroskopowe doktorantka wykonała w swoim macierzystym zespole w IFM PAN. Podstawową charakteryzację struktury krystalicznej warstw wykonano metodami dyfrakcji rentgenowskiej a morfologię powierzchni warstw scharakteryzowano metodami skaningowej mikroskopii tunelowej (STM) oraz mikroskopii sił atomowych (AFM). Realizując zadania badawcze pracy doktorskiej doktorantka miała do dyspozycji znakomicie wyposażone laboratoria technologiczne i pomiarowe Instytutu.

Rozprawa zawiera: wstęp (rozdział 1, w którym przedstawiono cel i zakres pracy doktorskiej), wprowadzające rozdziały (2-4), w których podano ogólną charakterystykę badanych materiałów i zjawisk fizycznych oraz omówiono stosowane przez doktorantkę metody technologiczne i doświadczalne, a także kluczowe rozdziały (5-6) zawierające oryginalne wyniki badawcze doktorantki i ich podsumowanie.

W rozdziale 2 krótko omówione są ważne zjawiska fizyczne obserwowane w cienkowarstwowych strukturach ferromagnetycznych, istotne dla programu badań podjętych w recenzowanej rozprawie: (1) anizotropię magnetyczną, ze szczególnym uwzględnieniem mechanizmów specyficznych dla ultra cienkich warstw, (2) międzywarstwowe (biliniowe i bikwadratowe) oddziaływania wymienne oraz (3) efekty magnetotransportowe (GMR i anomalny efekt Halla). Jest to użyteczne przypomnienie tych ważnych efektów.

Omawiając na stronach 7-8 różne wkłady do całkowitej energii ferromagnetyka, Autorka w jednym szeregu (i wzorze 2.1) umieszcza makroskopowe człony takie jak energia ferromagnetyka w polu zewnętrznym czy energia rozmagnesowania z mikroskopowym członem sprzężenia wymiennego dla danej pary spinów (bez odpowiedniego sumowania).

Również ogólne stwierdzenie, że wzór (2.6) opisuje anizotropię cienkich warstw ferromagnetycznych, choć prawdziwe dla wielu układów materiałowych, nie stosuje się np. dla rozcieńczonych, krystalicznych materiałów ferromagnetycznych, w których anizotropia magnetokrystaliczna w płaszczyźnie warstwy może być silniejsza od anizotropii kształtu. Sytuacja taka ma miejsce np. w cienkich warstwach ferromagnetycznego półprzewodnika (Ga,Mn)As.

Na str. 25-26 w klasyfikacji zjawisk galwanomagnetycznych Autorka wydaje się traktować prąd I (zamiast wektora gęstości prądu J) jako wielkość wektorową.

Rozdział 3 poświęcony jest omówieniu podstawowych właściwości magnetycznych i magnetotransportowych układu warstwowego Co/Au i aktualnego stanu wiedzy na temat wielowarstw Ni-Fe/Au/Co/Au będących przedmiotem badań doktorantki. Omówiono, w szczególności, zmiany anizotropii warstw Co w funkcji ich grubości i wzajemną korelację efektu GMR i właściwości magnetycznych (pętli histerezy magnetycznej, paskowej struktury domenowej, anomalnego efektu Halla). Przedstawiono także dane doświadczalne na temat zmian właściwości magnetycznych wielowarstw Ni-Fe/Au/Co/Au dla różnych grubości warstw Co: od ultracienkich ($d_{Co} < 0.6$ nm, superparamagnetycznych) do warstw ciągłych, ferromagnetycznych z anizotropią prostopadłą ($0.6 \text{ nm} < d_{Co} < 1.2$ nm) i anizotropią typu „łatwa płaszczyzna” ($d_{Co} > 1.2$ nm).

Rozdział 4 poświęcony jest omówieniu stanowisk technologicznych do osadzania warstw metodą rozpylania magnetronowego oraz napyłania termicznego z komórek efuzyjnych w stanowisku technologicznym MBE. Podano także zasadę działania i parametry techniczne szeregu układów pomiarowych, z których doktorantka korzystała w swojej pracy badawczej: magnetometru wibracyjnego, układu do pomiaru efektu Halla, dyfraktometru rentgenowskiego, dyfraktometru RHEED, skaningowego mikroskopu tunelowego STM i mikroskopu sił magnetycznych MFM. Omówiono także metodykę oryginalnych pomiarów oporności elektrycznej warstw wykonywanych w czasie ich wytwarzania w komorze technologicznej.

Zasadnicze, oryginalne wyniki badań doktorantki przedstawione są w bardzo obszernym rozdziale 5. Rozdział 5.1 dotyczy serii wielowarstw $[Py/Au/Co/Au]_N$ ($N=15$, $N=6$ i $N=5$) wytworzonych metodą rozpylania magnetronowego na utlenionym podłożu Si (001) w szerokim zakresie temperatur podłoża $T_D=25-250$ °C. Grubość warstw permaloju była stała

$d_{Py} = 2$ nm i została dobrana tak aby warstwy te posiadały anizotropię magnetyczną typu „łatwa płaszczyzna”. Zastosowana grubość warstwy Au $d_{Au} = 2$ nm zapewnia relatywnie mały wkład sprzężeń wymiennych pomiędzy warstwami Py i Co. Grubość warstw Co była natomiast zmieniana w zakresie $d_{Co} = 0.25 - 1.5$ nm, w którym obserwowano zarówno prostopadłą jak i płaszczyznową anizotropię magnetyczną. Wytworzono także pojedyncze, referencyjne warstwy Py, Au i Co o grubości 30 nm.

W rozdziale 5.1 przedstawione są ważne wyniki pomiarów efektu GMR w funkcji grubości warstwy Co w wielowarstwach Py/Au/Co/Au osadzanych w różnych temperaturach. Magnetoopór, osiągający maksymalnie ok. 5 % dla pola magnetycznego $H=1$ kOe przyłożonego prostopadle do płaszczyzny warstwy, interpretowano jako wpływ charakterystycznych zmian struktury domenowej warstw. Zaobserwowano zarówno efekt GMR oczekiwany w przypadku anizotropii prostopadłej warstwy Co jak i w przypadku superparamagnetycznych warstw Co. Potwierdzeniem tej interpretacji są obrazy struktury domenowej wielowarstw uzyskane metodą mikroskopii MFM. Istotnym uzupełnieniem tych badań są pomiary pętli histerezy magnetycznej wykonane metodą magnetometrii wibracyjnej i anomального efektu Halla.

Zmiany struktury krystalicznej warstw i morfologii ich powierzchni w funkcji temperatury osadzania zostały zbadane metodą mikroskopii STM i metodą dyfrakcji niskokątowej SAXRD. Dobrze zdefiniowane struktury warstwowe, wykazujące charakterystyczne supersieciowe maksima dyfrakcyjne uzyskano dla temperatur podłoża $T_D=25-150$ °C. Natomiast zasadnicze pogorszenie jakości wielowarstw obserwowano dla temperatury $T_D=250$ °C.

Bardzo cenne, oryginalne wyniki pomiarów oporu elektrycznego podczas wytwarzania wielowarstw Ni-Fe/Au/Co/Au przedstawione w części 5.1.2.2 pozwalają na wyznaczenie szeregu parametrów mikroskopowych (np. progu perkolacji przewodnictwa elektrycznego, drogi swobodnego przebiegu elektronów) ważnych dla opisu transportu elektronowego w poszczególnych warstwach. Wyniki te przedstawione w funkcji grubości warstwy są analizowane w 4 różnych modelach teoretycznych transportu elektronowego w cienkich warstwach metalicznych z uwzględnieniem takich efektów jak zwierciadlane odbicie na granicach warstwy czy też rozpraszanie na granicach ziaren krystalicznych. Niestety, żaden z zastosowanych modeli nie daje w pełni satysfakcjonującego opisu obszaru ultra cienkich warstw, a parametry określone w różnych modelach różnią się znacznie. Bardzo zawęża to możliwości wykorzystania tych ciekawych danych doświadczalnych do wiarygodnego modelowania efektu GMR.

W części 5.1.3 rozdziału omawiane są wyniki pomiarów niskotemperaturowych namagnesowania (w tzw. reżimach FC-ZFC) i mikroskopii MFM, potwierdzające superparamagnetyczne zachowanie cienkich warstw Co hodowanych w zbyt wysokich temperaturach. W podsumowaniu rozdziału 5.1 Autorka podaje długą listę użytecznych informacji o charakterze technologicznym.

Rozdział 5.2 poświęcony jest wielowarstwom $[Ni-Fe/Au/Co/Au]_5$ o analogicznym do omawianego wyżej zakresie grubości ale wytwarzanych metodą naparowania termicznego z wykorzystaniem komórek efuzyjnych w stanowisku technologicznym MBE. Autorka zrealizowała program charakteryzacji strukturalnej oraz pomiarów magnetycznych i elektrycznych analogiczny do omówionego wyżej dla warstw osadzanych metodą rozpylania magnetronowego. Hodując warstwy metodą MBE doktorantka dodatkowo miała do dyspozycji dyfraktometr RHEED - ważne narzędzie charakteryzacji warstw w czasie ich wzrostu. Uzyskano szereg ważnych informacji o strukturze krystalicznej i morfologii poszczególnych warstw. Przedstawione na rys. 5.27 – 5.29 dyfraktogramy RHEED wskazują, że nie uzyskano jednak dobrze zdefiniowanego dwuwymiarowego modu wzrostu warstw.

Porównanie właściwości wielowarstw $[\text{Py}/\text{Au}/\text{Co}/\text{Au}]_N$ wytwarzanych obiema metodami zostało przedstawione w rozdziale 5.3. Istotne różnice w ważnych parametrach fizycznych obu metod (dużo większa szybkość wzrostu warstw i energia atomów padających na podłoże w metodzie magnetronowej) mają swoje odzwierciedlenie we właściwościach magnetycznych i elektrycznych wielowarstw. Obserwowany silniejszy efekt GMR dla wielowarstw $[\text{Ni-Fe}/\text{Au}/\text{Co}/\text{Au}]_N$ (o małej liczbie powtórzeń N) naparowanych termicznie Autorka wiąże z lepszą strukturą krystaliczną pierwszych kilku sekwencji wielowarstwy. Dopiero dla 15 powtórzeń układy wytwarzane magnetronowo wykazują podobnej wielkości efekt GMR i zachowują go do wyższych temperatur osadzania. Szczegółowo omówione są także różnice w morfologii powierzchni i sposobie wzrostu poszczególnych warstw i ich wpływie na transport elektronowy (np. progi perkolacji przewodnictwa elektrycznego).

Lektura rozdziału 5 pracy nasuwa także poniższe uwagi.

1) Przedstawione na rys. 5.8 (str. 87) i rys. 5.26 (str. 115) widma dyfrakcji rentgenowskiej są najprawdopodobniej, wzajemnie przesunięte wzdłuż osi OY. Brak jest jednak informacji na ten temat i odpowiedniego opisu osi OY. Choć w dyskusji tych wyników Autorka podkreśla, iż świadczą one o dobrej jakości struktur warstwowych osadzanych w niezbyt wysokich temperaturach, to nie podejmuje, niestety, próby wyznaczenia z tych danych okresu wielowarstwy i porównania z założeniami technologicznymi.

2) Na rys. 5.15 (str. 100) i rys. 5.36 (str. 128) przedstawiono wyniki pomiarów namagnesowania w tzw. reżimach ZFC i FC. Brak opisu ilościowego osi OY tych rysunków nie pozwala ustalić z jak dużymi względnymi różnicami mamy do czynienia.

3) Na str. 114-114, dyskutując widma dyfrakcji SAXRD wielowarstw naniesionych termicznie (brak pików dyfrakcyjnych dla kątów powyżej 8 stopni) Autorka wnioskuje o ich gorzej zdefiniowanej strukturze warstwowej (w porównaniu do warstw naniesionych magnetronowo). Należy jednak zwrócić uwagę, że mamy tu do czynienia z 3 razy mniejszą liczbą powtórzeń w supersieci i wniosek taki powinien być mocniej uzasadniony np. prezentacją widm oczekiwanych na podstawie dostępnych procedur teoretycznego modelowania widm dyfrakcji SAXRD. W tym samym akapicie Autorka omyłkowo określa pomiary SAXRD jako związane z rozpraszaniem promieniowania rentgenowskiego. Na str. 148 podobny błąd dotyczy metody RHEED. W obu przypadkach mamy do czynienia z technikami dyfrakcyjnymi, jak prawidłowo podano w rozdz. 4 rozprawy.

Podsumowanie rozprawy podane jest w rozdziale 6. Na końcu rozprawy zamieszczono bibliografię (128 pozycji).

W mojej ocenie, najważniejsze osiągnięcia badawcze pracy doktorskiej Małgorzaty Błaszczak można podsumować następująco.

1) Wytworzenie metodami rozpylania magnetronowego oraz naparowania termicznego dużego zbioru dobrej jakości ferromagnetycznych wielowarstw $\text{Ni-Fe}/\text{Au}/\text{Co}/\text{Au}$ osadzonych na utlenionym podłożu Si (001). Trafny dobór grubości poszczególnych warstw pozwolił, w szczególności, na wytworzenie pożądanego układu z prostopadłą anizotropią warstw Co i anizotropią typu „łatwa płaszczyzna” warstw Py.

2) Zbadanie mechanizmu wzrostu poszczególnych warstw przy wykorzystaniu takich metod analizy jak mikroskopia STM, dyfraktometria RHEED oraz pomiary zmiany oporności elektrycznej warstw w czasie ich osadzania.

3) Określenie zależności oporności ultra cienkich warstw Py, Co i Au (nanoszonych różnymi metodami) od ich grubości. Zastosowanie kilku modeli teoretycznych do

wyznaczenia ważnych parametrów mikroskopowych, opisujących transport elektronowy w ultra cienkich warstwach tych materiałów.

4) Doświadczalne zbadanie efektu gigantycznego magnetooporu GMR oraz pętli histerezy magnetycznej (magnetometria wibracyjna i anomalny efekt Halla) wielowarstw Ni-Fe/Au/Co/Au dla grubości warstw Co w zakresie $d_{\text{Co}}=0.25-1.5$ nm, odpowiadających różnym typom anizotropii warstwy Co. Zaproponowanie modelu fizycznego efektu GMR, w którym charakterystyczny niemonotoniczny przebieg histerezy magnetycznej tego efektu związany jest z parametrami pętli histerezy: polem nasycenia i polem nukleacji domen w warstwie Co.

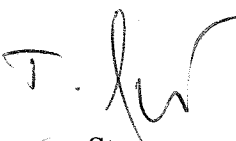
Praca napisana jest starannie i zawiera stosunkowo niedużą liczbę drobnych potknięć edytorsko-językowych, w szczególności:

- 1) na stronie 73 „wysokość sygnału” (w magnetometrii wibracyjnej) - lepiej „amplituda sygnału”;
- 2) na str. 83 (i kolejnych) Autorka stosuje niefortunny termin „pętla napięcia Halla” dla pętli histerezy magnetycznej rejestrowanej w pomiarach anomalnego efektu Halla.

W swojej pracy doktorskiej mgr M. Błaszyk podjęła (i zrealizowała) ciekawy, obszerny program wartościowych prac technologicznych oraz doświadczalnych badań właściwości magnetycznych i elektrycznych wielowarstw Ni-Fe/Au/Co/Au wytwarzanych dwiema nowoczesnymi metodami technologicznymi (MBE oraz rozpylaniem magnetronowym). Skuteczna realizacja tych zadań wymagała zastosowania szeregu technik pomiarów magnetometrycznych, galwanomagnetycznych i strukturalnych. Wiele uwagi poświęcono pomiarom strukturalnym i elektrycznym wykonywanym podczas wzrostu warstw w komorze technologicznej. Autorka uzyskała dzięki temu unikatowe informacje np. na temat elektrycznych parametrów ultracienkich warstw permaloju, Co i Au. Pozwoliło to także na zbadanie mechanizmów wzrostu tych warstw na poszczególnych etapach wytwarzania wielowarstw. Świadczy to o bardzo dobrym opanowaniu przez doktorantkę nowoczesnych metod wytwarzania, charakteryzacji strukturalnej i doświadczalnych badań nowoczesnych warstwowych materiałów magnetycznych.

Wyniki badawcze uzyskane przez doktorantkę są już przedstawione w 3 publikacjach na temat wielowarstw Ni-Fe/Au/Co/Au, których dotyczy jej rozprawa doktorska a także w 3 publikacjach na temat układów warstwowych ferromagnetyk-półprzewodnik Fe-Si i Fe-Ge. W 3 pracach doktorantka jest na pierwszym miejscu listy autorów.

Podsumowując stwierdzam, że rozprawa doktorska mgr Małgorzaty Błaszyk pt. „Właściwości elektryczne i magnetyczne układów wielowarstwowych Ni-Fe/Au/Co/Au otrzymywanych metodami rozpylania jonowego i naparowania termicznego ” spełnia wymogi stawiane pracom doktorskim i wnoszę o dopuszczenie do jej publicznej obrony.



Tomasz Story