

Warszawa, 12.07.2016

Prof. dr hab. Tadeusz Wosiński
Instytut Fizyki PAN, Warszawa

RECENZJA

rozprawy doktorskiej mgr inż. Sylwii Stefanowicz pt.:

„Magnetyczny diagram fazowy i wykładniki krytyczne w izolatorze magnetycznym (Ga,Mn)N”

Przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska mgr inż. Sylwii Stefanowicz jest pracą eksperymentalną, poświęconą badaniom i szczegółowej analizie właściwości magnetycznych warstw epitaksjalnych trójskładnikowego związku półprzewodnikowego (Ga,Mn)N. Rozprawa wykonana została w Środowiskowym Laboratorium Spintroniki i Kriogeniki Instytutu Fizyki PAN pod kierunkiem prof. dr hab. Macieja Sawickiego. Tematyka pracy jest aktualna i ważna dla zrozumienia zjawisk zachodzących w rozcieńczonych półprzewodnikach magnetycznych. Materiały te, łączące właściwości półprzewodnikowe z magnetyzmem, są obecnie przedmiotem intensywnych badań w wielu ośrodkach naukowych na świecie, zarówno ze względu na interesujące zjawiska fizyczne w nich występujące jak i możliwość ich zastosowań w elektronice spinowej. Szczególne miejsce wśród tej klasy materiałów zajmuje (Ga,Mn)N, w którym kilka procent atomów galu w sieci krystalicznej azotku galu zastąpione zostało atomami manganu. Pokładano duże nadzieje na uzyskanie w nim długozasięgowego uporządkowania ferromagnetycznego jonów Mn^{2+} za pośrednictwem swobodnych dziur w temperaturze pokojowej, co miałyby zasadnicze znaczenie dla możliwości zastosowań tego materiału w technologii nowoczesnych przyrządów magnetoelektrycznych dla spintroniki półprzewodnikowej.

Rozprawa liczy 108 stron, zawiera ponad 80 rysunków, wykresów i zdjęć oraz 4 tabele. Jest podzielona na 6 rozdziałów, poprzedzonych krótkim Wstępem, i zakończona Podsumowaniem oraz Dodatkiem prezentującym dorobek naukowy autorki i spisem literatury obejmującym 100 pozycji. We Wstępie autorka zdefiniowała cele naukowe przeprowadzonych badań, przedstawiła motywację ich podjęcia oraz układ rozprawy. W rozdziale 1 przedstawiła podstawowe informacje dotyczące struktury pasmowej i krystalicznej badanego związku półprzewodnikowego oraz aktualny stan wiedzy nt. właściwości magnetycznych warstw (Ga,Mn)N, a także przegląd mechanizmów oddziaływań wymiennych między jonami magnetycznymi w

ciałach stałych. W rozdziale 2 doktorantka krótko przedstawiła teorię przejść fazowych Landaua oraz zdefiniowała wykładniki krytyczne opisujące zachowanie parametrów fizycznych układu w pobliżu przejścia fazowego. W rozdziale 3 opisała obszernie stosowane techniki pomiarowe, przede wszystkim magnetometrię SQUID a także działania chłodziarki rozcieńczalnikowej oraz procedury pomiarowe umożliwiające rejestrację słabych sygnałów namagnesowania w bardzo małym polu magnetycznym.

W rozdziale 4 autorka przedstawiła właściwości strukturalne badanych warstw (Ga,Mn)N, hodowanych w procesach epitaksji ze związków metaloorganicznych (MOVPE) oraz epitaksji z wiązek molekularnych (MBE) na grubym buforze GaN osadzonym na podłożach szafirowych. Doktorantka dysponowała ponadto wielowarstwą, wyhodowaną techniką MBE, w postaci supersieci ośmiokrotnie powtarzanych sekwencji (Ga,Mn)N/GaN:Mg, w której silne domieszkowanie magnezem warstw GaN miało na celu wprowadzenie dużej koncentracji swobodnych dziur do warstw półprzewodnika magnetycznego. Warto podkreślić, że przeznaczone do badań struktury wytworzone zostały w renomowanych laboratoriach europejskich: w grupie prof. A. Bonnani na Uniwersytecie w Linzu (warstwy MOVPE) oraz w grupie prof. D. Hommela na Uniwersytecie w Bremie (warstwy MBE). Warstwy te były poddane wszechstronnej charakteryzacji strukturalnej metodami spektroskopii rentgenowskiej i mikroskopii elektronowej w ośrodkach zagranicznych oraz spektroskopii masowej jonów wtórnych (SIMS) w Instytucie Fizyki PAN.

Zasadniczą część rozprawy stanowią rozdziały 5 i 6 poświęcone opisowi uzyskanych przez doktorantkę wyników pomiarów właściwości magnetycznych badanych warstw oraz ich szczegółowej analizie. Część rezultatów przedstawionych w rozprawie została już opublikowana w pięciu publikacjach wydrukowanych w międzynarodowych czasopismach naukowych o wysokiej renomie, chociaż tylko w jednej z nich doktorantka jest pierwszym autorem. Pozytywne wrażenie robi również długa lista prezentacji ustnych i plakatowych przedstawianych przez autorkę na szeregu konferencji międzynarodowych i krajowych. Część prac badawczych doktorantka prowadziła w ramach rocznego stypendium doktorskiego finansowanego przez Samorząd Województwa Mazowieckiego oraz grantu PRELUDIUM Narodowego Centrum Nauki.

Mocną stroną rozprawy doktorskiej są bardzo starannie wykonane przez autorkę, precyzyjne pomiary magnetometryczne, zarówno w funkcji pola magnetycznego jak i temperatury, kilkunastu dobrze scharakteryzowanych warstw (Ga,Mn)N o różnej zawartości jonów Mn, w szerokim zakresie od ok. 1% do ponad 10%. Uzyskane rezultaty pozwoliły autorce na wyznaczenie magnetycznego diagramu fazowego (temperatura Curie – zawartość jonów Mn) dla tych warstw, co należy uznać za najważniejszy wynik naukowy rozprawy.

Wynik ten, wraz z przewidywaniami obliczeń teoretycznych metodami ciasnego wiązania oraz Monte Carlo, otrzymanymi we współpracy fizyków z Uniwersytetu Warszawskiego i Uniwersytetu Ateńskiego, pozwala na rozstrzygnięcie wielu kontrowersji utrzymujących się w literaturze, dotyczących stanu ładunkowego jonów Mn w (Ga,Mn)N oraz mechanizmu oddziaływań między nimi. Wyniki uzyskane przez doktorantkę wyraźnie pokazują, że, w warstwach o zawartości jonów Mn poniżej 10%, znajdują się one w stanie ładunkowym Mn^{3+} umiejscawiając poziom Fermiego w pobliżu środka przerwy wzbronionej i powodując, że warstwy te są elektrycznie półizolujące. Oddziaływanie między jonami Mn ma charakter krótkozasięgowej nadwymiany ferromagnetycznej, czego konsekwencją są stosunkowo niskie wartości temperatury Curie, poniżej 13 K, w badanych warstwach.

Drugi podstawowy cel rozprawy doktorskiej, tzn. wyznaczenie wykładników krytycznych dla przejścia fazowego paramagnetyk/ferromagnetyk w (Ga,Mn)N, również został osiągnięty, chociaż uzyskane przez doktorantkę wyniki nie są tak jednoznaczne a ich interpretacja nie jest w pełni udokumentowana. Przeprowadzona analiza zachowania krytycznego badanych warstw różnymi metodami daje różne wartości wykładników krytycznych, co spowodowane jest przede wszystkim obserwowanym rozmyciem przejścia paramagnetyk/ferromagnetyk w badanych warstwach. Zgodnie z interpretacją przedstawioną przez autorkę rozprawy rozmycie to wynikać może z makroskopowych niejednorodności rozkładu koncentracji jonów Mn w warstwach lub też występowania mikroobszarów o bardzo wysokiej, blisko 100%, zawartości jonów Mn. Doktorantka nie podjęła jednak próby rozstrzygnięcia tych wątpliwości np. poprzez wykonanie, dostępną w IF PAN techniką SIMS, systematycznych pomiarów rozkładów przestrzennych oraz głębokościowych koncentracji jonów Mn, przynajmniej w warstwach o największym rozmyciu przejścia paramagnetyk/ferromagnetyk lub największej różnicy koncentracji jonów Mn, wyznaczonych z pomiarów magnetometrem SQUID oraz techniką SIMS.

Na podkreślenie zasługuje ponadto bardzo interesujący wynik uzyskany przez doktorantkę dla badanej wielowarstwy (Ga,Mn)N/GaN:Mg. Próby domieszkowania warstw (Ga,Mn)N w procesie ich epitaksjalnego wzrostu, zarówno płytkami donorami Si jak i płytkami akceptorami Mg a także domieszką izoelektronową As, nie powiodły się. Wyniki badań techniką SIMS takich warstw pokazały, że domieszki te nie wbudowały się w sieć krystaliczną warstw (Ga,Mn)N. W tej sytuacji specjalnie wyhodowana wielowarstwa dawała nadzieję na uzyskanie wystarczająco dużej koncentracji dziur w (Ga,Mn)N, umożliwiającej uruchomienie mechanizmu długozasięgowego uporządkowania ferromagnetycznego jonów Mn za pośrednictwem swobodnych dziur. Bardzo obiecujący wynik pomiaru temperatury Curie dla tej wielowarstwy, sytuujący

się na magnetycznym diagramie fazowym znacznie powyżej wartości uzyskanych dla jednorodnych warstw (Ga,Mn)N, mógłby sugerować rzeczywiście wystąpienie tego rodzaju uporządkowania. Szkoda, że doktorantka nie dysponowała innymi tego typu strukturami, żeby wiarygodnie rozstrzygnąć tę hipotezę. Nie podjęła też próby oszacowania koncentracji dziur w badanej strukturze.

Redakcja rozprawy jest przejrzysta i starannie opracowana pod względem graficznym. Jej czytanie utrudnia jednak fakt, że większość rysunków i wykresów umieszczonych zostało nie na stronie, na której są opisywane. Rozprawa napisana jest na ogół poprawnym i zrozumiałym językiem. Do nieprawidłowych sformułowań należy używane wielokrotnie wyrażenie: „struktura wurcytu” zamiast polskiej nazwy „wurcytu” (od nazwy minerału występującego w przyrodzie). Zamiast „dyslokacje niciowe” (str. 42), powinno być użyte wyrażenie: „dyslokacje przenikające”, które przyjęło się w polskojęzycznej literaturze naukowej.

Inne drobne błędy edytorskie i nieścisłości:

- str. 22: we wzorze bez numeru powinno być b zamiast h ,
- str. 26: podpis pod Rys. 3.1 jest nieprecyzyjny,
- str. 44, podpis pod Rys. 4.3: koncentracja jonów Mn powinna być podana w jednostkach: cm^{-3} zamiast: cm^{-1} .

Podsumowując uważam, że przedstawione w rozprawie doktorskiej wyniki doświadczalne wraz z ich szczegółową analizą stanowią oryginalny wkład doktorantki w rozwój reprezentowanej dziedziny fizyki ciała stałego. Autorka zrealizowała zamierzone cele pracy przyczyniając się do lepszego zrozumienia zjawisk zachodzących w badanych przez nią warstwach trójskładnikowego związku półprzewodnikowego (Ga,Mn)N. Uzyskane rezultaty mogą mieć także znaczenie praktyczne dla wykorzystania tego typu warstw rozcieńczonych półprzewodników magnetycznych do zaproponowania nowych rozwiązań technologicznych, ważnych dla zastosowań w elektronice spinowej. Ponadto doktorantka wykazała doskonałe opanowanie stosowanych technik eksperymentalnych, jak również, głębokie zrozumienie badanych zjawisk fizycznych.

Stwierdzam, że recenzowana praca – mimo przedstawionych powyżej drobnych mankamentów – spełnia wymagania stawiane rozprawom doktorskim i wnoszę o dopuszczenie mgr inż. Sylwii Stefanowicz do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

THump