

Poznań, 27.11.2020 r.

dr hab. inż. Piotr Kuświk
Instytut Fizyki Molekularnej PAN

**Recenzja rozprawy doktorskiej mgr inż. Marcina Jakubowskiego
pt. „Modyfikowanie właściwości strukturalnych i magnetycznych ultracienkich warstw
kobaltu poprzez naświetlanie wiązką jonów”**

Rozprawa doktorska mgr inż. Marcina Jakubowskiego dotyczy wpływu bombardowania jonowego na właściwości magnetyczne wielowarstw zawierających warstwę kobaltu. Badania do pracy zostały zrealizowane w Instytucie Fizyki PAN w Warszawie w oddziale Fizyki Magnetyzmu w zespole Heterostruktur Magnetycznych. Promotorem rozprawy jest prof. dr hab. Andrzej Wawro, a promotorem pomocniczym jest dr Iosif Sveklo. Badania te były prowadzone w kooperacji z zespołem prof. dra hab. Andrzeja Maziewskiego z Uniwersytetu w Białymstoku (UwB). Badania przedstawione w rozprawie finansowane były z czterech projektów badawczych, tj. FNP SYMPHONY, NCN OPUS, FNP Powroty, NCN Harmonia.

Przedstawione wyniki badań dotyczą ważnej tematyki związanej ze strukturyzacją magnetyczną w oparciu o zastosowanie bombardowania jonowego. Bombardowanie to w zależności od doboru jonów, energii oraz dawki pozwala kontrolować właściwości magnetyczne układów warstwowych. W przypadku warstw Pt/Co/Pt bombardowanie jonowe, oprócz niszczenia prostopadłej anizotropii magnetycznej, może również indukować wkład faworyzujący tę anizotropię. Następuje to w dwóch charakterystycznych zakresach dawek przy odpowiednio dobranej grubości warstw Co. Te dwa wyróżnione zakresy zostały nazwane gałęziami I i II, gdyż przypisano im różne mechanizmy fizyczne odpowiadające za modyfikację anizotropii. W rozprawie Autor kontynuował ten nurt badań dotyczący układu Pt/Co/Pt i skupił się głównie na wykorzystaniu jonów Ar^+ o różnych energiach do modyfikacji anizotropii warstwy Co. W swojej rozprawie Doktorant badał również wpływ bombardowania jonowego na oddziaływania pomiędzy warstwami Co rozdzielonymi przekładką Mo. Wyniki badań eksperymentalnych są silnie wsparte symulacjami Monte Carlo z wykorzystaniem pakietu TRIDYN, który posłużył do określenia zmian położenia atomów po procesie bombardowania w funkcji dawki jonów. Dzięki temu, możliwa była korelacja zmian właściwości magnetycznych ze zmianami mikrostrukturalnymi.

Rozprawa doktorska jest zbiorem trzech artykułów opublikowanych w międzynarodowych czasopismach fizycznych, takich jak Journal of Physics: Condensed Matter, Physical Review Applied i Applied Physics Letters. Prace te są uzupełnione komentarzem Doktoranta. Ta forma opisu zebranych wyników jest niewątpliwie łatwiejsza w przygotowaniu niż „klasyczna” rozprawa składająca się z rozszerzonych opisów i analiz prowadzonych badań, aczkolwiek utrudnia nieco określenie wiedzy doktoranta w

przedmiocie stanowiącym temat rozprawy. W szczególności, że z oświadczenia dowiadujemy się, że główny wkład mgr inż. M. Jakubowskiego do publikacji [D2] i [D3] związany był z symulacjami numerycznymi prowadzonymi z wykorzystaniem programu TRIDYN i TRIM, które pozwoliły zaplanować naświetlania jonami Ga^+ , Ar^+ , Ne^+ , a następnie zinterpretować otrzymane wyniki. Przy tak określonym zakresie wkładu Doktoranta, oczekiwałem rozwinięcia tego zakresu badań w komentarzu do rozprawy. Niestety, w rozprawie znajduje się jedynie bardzo skromny opis tych metod obliczeniowych. Natomiast, zaletą zbioru opublikowanych i powiązanych tematycznie prac jest fakt, że główne osiągnięcia dysertacji zostały już ocenione przez zewnętrznych recenzentów powołanych przez redakcję czasopism. W mojej ocenie wszystkie trzy prace zawierają ciekawe wyniki eksperymentalne wsparte dobrze przeprowadzonymi symulacjami Monte Carlo i prezentują wysoki poziom.

Rozprawa rozpoczyna się streszczeniami w języku polskim i angielskim, po których Doktorant przedstawia spis treści. Po spisie treści zostały wymienione publikacje wchodzące w skład rozprawy oraz informacje o pozostałych publikacjach Doktoranta (sześć prac w czasopismach o zasięgu międzynarodowym) i prezentacjach konferencyjnych.

We wstępie rozprawy mgr inż. M. Jakubowski skupia się na opisie właściwości magnetycznych układów warstwowych wykazujących prostopadłą anizotropię magnetyczną oraz na oddziaływaniach pomiędzy warstwami ferromagnetycznymi, wymieniając jednocześnie szereg ich zastosowań. Omawia również wpływ bombardowania jonowego na anizotropię magnetyczną w różnych układach warstwowych. Szkoda, że w tej części rozdziału nie odniósł się do innych opublikowanych wyników dotyczących na przykład wpływu bombardowania jonowego na oddziaływanie międzywarstwowe. W dalszej części tego rozdziału Autor omawia cele rozprawy doktorskiej. Motywacją do podjęcia opisanych badań było określenie mechanizmów odpowiedzialnych za indukowanie znaczącego wkładu do efektywnej anizotropii magnetycznej o orientacji osi łatwej wzdłuż normalnej do powierzchni warstwy po procesie bombardowania jonowego. Pomimo, iż te mechanizmy zostały szczegółowo opisane w literaturze, mgr inż. M. Jakubowski skupił się na zmianach strukturalnych i powiązaniu ich z obserwowanymi zmianami właściwości magnetycznych. Badania Doktoranta wykazały, że należy uwzględnić, oprócz znanych mechanizmów, takich jak naprężenia, powstawanie stopu CoPt , tworzenie się klastrów Co w matrycy Pt , również defekty typu wakans lub atom w położeniu międzywęzłowym. Kolejnym celem pracy było określenie wpływu bombardowania jonowego na oddziaływanie międzywarstwowe, a tym samym na konfigurację magnetyczną w układzie pseudo zaworów spinowych typu Mo/Co/Mo/Co/Mo . W swoich badaniach Doktorant duży nacisk położył na korelację właściwości magnetycznych ze zmianami położenia atomów w bombardowanym układzie warstwowym wyliczonym z symulacji Monte Carlo. Takie symulacje są ogromnym wsparciem w planowaniu i przygotowaniu eksperymentów związanych z bombardowaniem jonowym.

W kolejnych rozdziałach Doktorant przedstawia opis podstawowych zagadnień fizycznych dotyczących cienkich warstw magnetycznych, ich anizotropii oraz oddziaływań międzywarstwowych. Sporo uwagi poświęca omówieniu poszczególnych wkładów do anizotropii magnetycznej i słusznie, gdyż jest ona jednym z kluczowych parametrów

modyfikowanych bombardowaniem jonowym w prezentowanych w rozprawie eksperymentach. W swojej analizie dużo uwagi poświęcił stałym anizotropii pierwszego i drugiego rzędu i ich wzajemnej relacji, która decyduje o położeniu wektora namagnesowania w remanencji. Szkoda, że w rozprawie mgr inż. M. Jakubowski nie pokusił się o wyznaczenie tych stałych anizotropii i przedstawieniu ich zmian w funkcji dawki jonów. To pozwoliłoby sprawdzić, czy i w jaki sposób w obszarach poza gałęziami I i II bombardowanie jonowe prowadzi do zmian anizotropii magnetycznej. Taka analiza byłoby ciekawym uzupełnieniem uzyskanych wyników. Podobną informację mogłaby dostarczyć mapa przedstawiona na Rys. 3 w pracy [D1], jednakże zastosowana skala kolorów (odcięcie danych na poziomie $H_{\text{eff}} \leq 3.0$ kOe) nie pozwala na taką analizę. W tej części rozprawy zabrakło mi również informacji o tym w jaki sposób na podstawie pomiarów pętli histerezy można określić wartość stałej oddziaływania, której wyznaczenie stanowiłoby ważne uzupełnienie informacji przedstawionych w pracach [D2] i [D3]. Przypuszczam, że Autor nie omawiał tego zagadnienia, gdyż w tych publikacjach rozważa jedynie zmianę wzajemnego ustawienia wektorów namagnesowania (równoległe lub antyrównoległe) warstw Co. W mojej ocenie, takie ilościowe podejście dostarczyłoby wielu interesujących i ważnych wyników badań.

Rozdział IV poświęcony jest modyfikacji struktury krystalicznej poprzez bombardowanie jonami. W tym rozdziale opisane zostały podstawowe mechanizmy zachodzące w ciele stałym w wyniku transferu energii przemieszczających się jonów. Autor w rozprawie wskazuje, że bombardowanie jonowe można zamiennie nazywać implantacją. Należy jednak, zwrócić uwagę, że bombardowanie jonowe prowadzi do szeregu procesów w tym również do implantacji materiału umożliwiając kontrolę koncentracji, zasięgu oraz rozkładu wprowadzanych do bombardowanego materiału domieszek (jonów). W sytuacji jednak, gdy zasięg jonów jest na tyle duży, że większość jonów dociera do warstwy buforowej lub podłoża, implantacja zwykle nie odgrywa istotnej roli z punktu widzenia modyfikacji właściwości magnetycznych badanych warstw. Głównym źródłem zmian tych właściwości są translacyjne przemieszczenia atomów wywołane transferem energii pomiędzy jonem a atomami bombardowanego materiału, a nie obecnością niewielkiej liczby jonów. Dlatego stosowanie sformułowanie implantacja mogłoby prowadzić do błędnego odbioru przekazu informacji.

Rozdział V opisuje techniki eksperymentalne dotyczące wytwarzania warstw, bombardowania jonowego, pomiarów magnetycznych i strukturalnych oraz symulacje Monte Carlo. Biorąc pod uwagę opisy znajdujące się w tym rozdziale, mam wrażenie, że Autor rozprawy skoncentrował się na kilku technikach pomiarowych tj. RBS, PAS, MOKE. Natomiast bardzo skrótowo opisał symulacje numeryczne, a z niektórych opisów technik pomiarowych w ogóle zrezygnował, uznając je za powszechnie znane (np. STM, SEM, XRD). Moim zdaniem takie proporcje utrudniają ocenę wiedzy doktoranta w temacie rozprawy, w szczególności, że w dużej mierze rozszerzone opisy dotyczyły pomiarów, których Doktorant nie wykonywał samodzielnie. Uwzględniając to, że mgr inż. M. Jakubowski specjalizuje się w symulacjach numerycznych, liczę na to, że podczas obrony przedstawi modele fizyczne użyte w kodach TRIDYN i TRIM oraz omówi jakie mają ograniczenia. Jest to szczególnie ważne,

ponieważ w publikacjach Autor podkreśla, że wyniki uzyskane w symulacjach mają charakter przybliżony. W tej części dysertacji na rysunku 20 został pokazany układ pomiarowy PMOKE, który został złożony w Instytucie Fizyki PAN. Czy pomocnicze pomiary PMOKE, o których jest wzmianka w komentarzu do rozprawy, wykonywane były z wykorzystywany tego urządzenia?

W kluczowej części rozprawy (rozdział VI) opisane są wyniki i osiągnięcia prezentowane w pracach stanowiących rozprawę. W publikacji [D1] badano układ warstwowy typu Pt/Co/Pt, z różną grubością subwarstwy Co, poddany bombardowaniu jonami Ar^+ o różnych energiach (1,2 keV, 5 keV i 30 keV). Badania te są kontynuacją prac prowadzonych we współpracy z UwB i miały na celu odpowiedzieć na pytanie czy są inne mechanizmy indukowania prostopadłej anizotropii magnetycznej niż już obecnie znane. W przeprowadzonych eksperymentach zauważono, że wraz z obniżaniem energii jonów Ar^+ następuje zmiana położenia gałęzi I w kierunku wyższych dawek, przy czym położenie gałęzi II praktycznie nie zmienia się w funkcji dawki. W mojej ocenie jest to bardzo ciekawy wynik. Zmiany położenia tej gałęzi, mgr inż. M. Jakubowski wiąże z głębokością wnikania jonów i utratą ich energii na różnych głębokościach, co wpływa na rozkład defektów i procesów mieszania w układach cienkowarstwowych. Szkoda, że Autor nie załączył do rozprawy suplementu do pracy [D1], w którym znajduje się obszerny i ciekawy materiał, znacząco uzupełniający wyniki pokazane w tej pracy. Brak tego suplementu nie jest jednak dużą wadą, gdyż z łatwością można go odszukać na stronach czasopisma i z przyjemnością zapoznałem się z jego treścią. Nawiązując do wyników pracy [D1] mam kilka pytań:

-Skąd wiadomo, że dla najmniejszej energii jonów zmianom anizotropii należy przypisać zmiany strukturalne charakterystyczne dla gałęzi II, skoro dla tych energii i dużych dawek (F_{high}) symulacje wskazują, że subwarstwa Co nie jest silnie wymieszana z warstwą Pt (Rysunek S8 b) jak ma to miejsce dla wyższych energii jonów Ar^+ ?

- Czy w wyniku trawienia wierzchniej warstwy Pt, można oczekiwać utleniania warstw Co, a tym samym obserwować wzrost anizotropii prostopadłej, jak ma to miejsce dla interfejsów Co/Tlenek metalu (np. $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$) .

-W symulacjach TRIDYN wraz ze wzrostem energii jonów, przy zachowaniu tej samej dawki, grubość trawienia wierzchniej warstwy rośnie (Rysunek S9). Jednocześnie w suplemencie na Rysunku S6 pokazano, że głębokość trawienia jest większa dla małych energii jonów przy tej samej dawce. Skąd wynikają te rozbieżności pomiędzy eksperymentem a symulacjami?

W pracach [D2] i [D3] badany był wpływ bombardowania jonowego na sprzężenie obserwowane w pseudo zaworach spinowych zawierających dwie warstwy Co przedzielone niemagnetyczną przekładką Mo o zmiennej grubości ($0 < d_{\text{Mo}} < 3\text{nm}$). W takim układzie, dla grubości Mo od 0,5 nm do 1nm, występuje sprzężenie antyferromagnetyczne, a w pozostałym zakresie badanych grubości Mo sprzężenie jest ferromagnetyczne. W pracy [D2] bombardowanie prowadzono przy użyciu jonów Ga^+ o energii 35 keV. Zaobserwowano, że wraz ze wzrostem dawki następuje osłabienie sprzężenia antyferromagnetycznego, a powyżej krytycznej dawki $D \leq 2,75 \times 10^{13} \text{ Ga}^+/\text{cm}^2$, warstwy Co sprzęgają się ferromagnetycznie. W oparciu o symulacje TRIDYN, wykonane przez Doktoranta, pokazano,

że zanik tego oddziaływania związany jest z mieszaniem się warstw Co i Mo. Wykazano, że utrata sprzężenia antyferromagnetycznego następuje, gdy 20 % Co znajduje się w środkowej części przekładki Mo, natomiast utrata właściwości ferromagnetycznych warstw Co w temperaturze pokojowej następuje, gdy ich średnia koncentracja atomów Co spadnie poniżej 80 %. Kontynuacją tych badań są wyniki pomiarów pokazane w pracy [D3], w której do bombardowania jonowego wykorzystywano jony Ne^+ i Ar^+ o energiach odpowiednio 17 keV i 30 keV. Energia stosowanych jonów została dobrana przez Autor na podstawie symulacji TRIDYN, tak aby transfer energii był największy w obszarze występowania przekładki Mo. Dla tych odpowiednio dobranych energii jonów Ne^+ i Ar^+ , zaobserwowano podobne zmiany zaniku oddziaływania antyferromagnetycznego, przy czym dla jonów Ne^+ przejście to zachodziło dla nieco większej dawki niż jonów dla Ar^+ . W obu pracach autorzy nie przypisali jednoznacznie źródła zmian oddziaływania, jako najbardziej prawdopodobne podają wzrost szorstkość międzywierzchni, tworzenie się mostków magnetycznych czy obecność słabo związanych spinów Co w warstwie Mo. Opracowana technika bombardowania jonowego w układzie Co/Mo/Co może być wykorzystana do wytwarzania struktur magnonicznych, jeśli bombardowanie jonowe będzie prowadzone lokalnie. Autorzy w pracy [D3] pokazali możliwe warianty tej strukturyzacji, szczególnie interesujący jest ten przypadek, w którym wytworzony kryształ magnoniczny ma rekonfigurowaną strukturę magnetyczną zewnętrznym polem magnetycznym. W wielu ośrodkach na świecie prowadzi się obecnie badania związane z poszukiwaniem takich kryształów magnonicznych. Analizując wyniki przedstawione w pracach [D2] i [D3], nasuwa się kilka pytań:

-Dlaczego w przypadku jonów Ar^+ 30keV procent atomów Co, który wymusza przejście od oddziaływania antyferromagnetycznego do ferromagnetycznego jest mniejszy niż dla jonów Ne^+ i Ge^+ ?

- W jaki sposób zaproponowane mechanizmy mogą redukować oddziaływanie antyferromagnetyczne?

-Czy uniwersalność, podkreślana w pracy [D3] i pokazana na Rysunku 9, wynika z tego, że odpowiednio zaprojektowano parametry bombardowania (rodzaj i energię jonów) prowadzące do bardzo podobnych zmian w mikrostrukturze? Czy to oznacza, że można zawsze dobrać odpowiednią energię dowolnego jonu, aby uzyskać przejścia od oddziaływania antyferromagnetycznego do ferromagnetycznego w układzie Co/Mo/Co?

- Autor w oświadczeniu podał, że do tych prac oprócz programu TRIDYN, korzystał również z programu TRIM. Nasuwa się więc pytanie, jakie informacje autor uzyskał z tego programu i do czego służyły te symulacje.

Rozprawę kończy bibliografia, zbiór publikacji stanowiących rozprawę oraz oświadczenia współautorów. Tutaj, inaczej niż to zwykle w naszej dziedzinie ma miejsce, nie pojawiły się oświadczenia wszystkich współautorów prac wchodzących w skład rozprawy. Po zapoznaniu się z Uchwałą określającą sposób postępowania w sprawie nadania stopnia naukowego doktora przez Radę Naukową Instytutu Fizyki PAN sprawa się wyjaśniła, gdyż określono w niej, że do rozprawy muszą być załączone oświadczenia co najmniej pięciu współautorów (w tym doktoranta) i ten warunek w recenzowanej rozprawie jest spełniony.

Zastanawiające jest jednak to, że w tych dokumentach brakuje oświadczenia promotora pomocniczego. Tutaj zmuszony jestem również podkreślić fakt, że autor rozprawy jest pierwszym i korespondencyjnym autorem tylko w pracy [D1], natomiast w pracy [D2] jest na czwartym miejscu listy współautorów, a w pracy [D3] na trzecim miejscu. Dobrze, że Doktorant w swoim oświadczeniu jednoznacznie określił swój udział i rolę w powstawaniu prac [D2] i [D3]. Polegała ona na nadzorze i zaplanowaniu naświetleń jonowych oraz wykonaniu symulacji numerycznych, które w mojej ocenie były bardzo pomocne przy analizie wyników otrzymanych z pomiarów magnetycznych i pozwoliły powiązać obserwowane zmiany oddziaływania ze zmiany mikrostrukturalnymi wywołanymi bombardowaniem jonowym. W rozprawie zabrakło jednak podsumowania, zawierającego najważniejsze osiągnięcia Doktoranta.

Rozprawa doktorska napisana jest niestarannie i zawiera dużą liczbę błędów edytorskich (literówek, błędów interpunkcyjne itp.). W komentarzu do rozprawy brakuje numeracji wzorów, nie znalazłem również odniesień do Rysunków 12 i 14, podpisy pod rysunkami są zbyt lakoniczne, a elementy występujące na rysunkach nie są opisane w tekście lub pod rysunkiem (np. czerwone strzałki na Rysunku 33, panele na Rysunkach 6 i 16). Zdarza się również, że rysunki są mało czytelne (np. Rysunki 1 i 26c). Z konieczności przytoczę kilka przykładów niefortunnnych sformułowań zawartych w rozprawie:

-strona 33 : „*przestrzenny rozkład dozy w formie klina...*” – Autorowi chodziło o gradientowy rozkład dawki,

-strona 37: „*Jednym z kluczowych zastosowań oscylacji grubości jest kalibracja szybkości wzrostu*” – powinno być „*Jednym z kluczowych zastosowań oscylacji intensywności wiązki elektronów jest kalibracja szybkości wzrostu*”,

- tytuł podrozdziału „*Anizotropia prostopadłego namagnesowania (PMA)*” i rozwinięcie skrótu „*PMA*” jako „*perpendicular magnetization anisotropy*”- powinno być „*perpendicular magnetic anisotropy*”, a po przetłumaczeniu na język polski „*prostopadła anizotropia magnetyczna*”,

-w rozprawie Autor błędnie używa określenia „*fluencja jonów*” powinno być „*dawka jonów*”. W wielu przypadkach te sformułowania i błędy edytorskie nie przeszkadzają w zrozumieniu rozprawy, a zatem mają raczej charakter redakcyjny i nie obniżają wartości naukowej uzyskanych wyników.

Zbiór publikacji tworzy spójną całość realizowanego planu badawczego dotyczącego wykorzystania bombardowania jonowego do modyfikacji właściwości magnetycznych układów cienkowarstwowych. Odpowiednio zaplanowane eksperymenty i techniki pomiarowe pozwoliły osiągnąć zamierzony cel rozprawy doktorskiej, a uzyskane rezultaty, pomimo iż należą do grupy badań podstawowych, mogą w przyszłości posłużyć do zastosowań w urządzeniach spintronicznych czy magnonicznych.

Rozprawa doktorska mgr inż. Marcina Jakubowskiego pt. „Modyfikowanie właściwości strukturalnych i magnetycznych ultracienkich warstw kobaltu poprzez naświetlanie wiązką jonów” dotyczy procesów modyfikacji mikrostruktury warstw magnetycznych

bombardowaniem jonowym, w szczególności procesów mieszania balistycznego oraz generacji defektów typu wakans i atomów w położeniach międzywęzłowych. Są to zagadnienia ważne z punktu widzenia strukturyzacji magnetycznej, która często wymagana jest w zastosowaniach. Biorąc pod uwagę omówione wcześniej wyniki badań opublikowane w trzech publikacjach i wkład doktoranta w ich powstawanie, stwierdzam, że spełniają one wymagania ustawowe stawiane kandydatom do stopnia doktora. W związku z tym wnioskuję o dopuszczanie mgr inż. Marcina Jakubowskiego do dalszych etapów postępowania w sprawie nadania stopnia doktora.

