

Prof. dr hab. Romuald Lemański
Instytut Niskich Temperatur
i Badań Strukturalnych PAN
we Wrocławiu

Wrocław, 15 grudnia 2020 r.

Recenzja rozprawy doktorskiej Pani mgr Doroty Gotfryd

p.t. „The low-energy models of Mott insulators with a finite spin-orbit coupling”

(Niskoenergetyczne modele dla izolatorów Motta ze skończonym sprzężeniem spin-orbita)

1. Informacje ogólne o tym czego dotyczy rozprawa i jaki jest jej zakres

W tej napisanej w języku angielskim rozprawie przedstawiono kompleksową analizę teoretyczną zjawisk, które występują w związkach metali przejściowych z dużym sprzężeniem spin-orbita, takich jak Na_2IrO_3 i $\alpha\text{-RuCl}_3$. Analiza ta obejmuje dwa zagadnienia:

- 1) uporządkowanie magnetyczne w stanie podstawowym dla różnych wersji modelu Kitajewa-Heisenberga na sieci typu plastra miodu,
- 2) ewolucja splątania spinowo-orbitalnego przy zmianie sprzężenia spin-orbita na bazie modelu Kugela-Khomskiego w łańcuchu jednowymiarowym.

W związku z tym rozprawa zawiera w sobie dwie wyodrębnione części, z których każda składa się z rozdziału wprowadzającego do danego zagadnienia (rozdz. 2 do pierwszego z wymienionych i rozdz. 4 do drugiego) oraz rozdziału prezentującego oryginalne wyniki (odpowiednio rozdziały 3 i 5) uzyskane przez Panią mgr Dorotę Gotfryd, zwaną dalej również Autorką i współpracownikami.

Główną zawartość tej rozprawy stanowią diagramy fazowe, ich obszerny opis oraz dość głęboka analiza. Prezentacja diagramów fazowych jest poprzedzona dokładnym omówieniem danej wersji modelu, jego odniesienia do realnych układów, którymi tutaj są związki Na_2IrO_3 i $\alpha\text{-RuCl}_3$ oraz zastosowanych metod obliczeniowych. Metody, którymi posługiwała się Autorka to przede wszystkim samouzgodniona teoria średniego pola na klastrze składającym się z 24 węzłów (*self-consistent cluster mean-field theory - CMFT*) oraz w pewnych szczególnych przypadkach diagonalizacja macierzy Hamiltonianu.

Celem tej rozprawy sformułowanym jasno i zwięźle w rozdziale wstępnym (*Preface*) było znalezienie odpowiedzi na następujące dwa pytania (*w wolnym tłumaczeniu*):

- 1) Jakie (*obliczone*) właściwości stanu podstawowego w modelach typu Kitajewa można zmierzyć doświadczalnie i porównać z istniejącymi danymi eksperymentalnymi w materiałach uważanych za goszczących fizykę typu Kitajewa?
- 2) Jak splątanie kwantowe stopni swobody wymuszone dużym lokalnym sprzężeniem spin-orbita jest związane ze splątaniem spinowo-orbitalnym oraz jak ewoluuje stan podstawowy ze wzrostem sprzężenia spin-orbita od znikomego do granicy dużego wartości?

Dodatkowym celem było zebranie dotychczasowej wiedzy na temat układów typu Kitajewa i splątania spinowo-orbitalnego.

2. Formalne dane na temat rozprawy (*info o publikacjach, które stanowią jej podstawę, jakie są rozdziały, ilość stron, info o danych bibliograficznych, itd.*)

Rozprawa doktorska Pani mgr Doroty Gotfryd opiera się na 4 pracach z tzw. listy filadelfijskiej, w tym dwie opublikowane w *Physical Review B* w latach 2017 i 2019, oraz dwóch pracach z 2020 roku, które ukazały się w *Physical Review Research* oraz *Condensed Matter*. Wszystkie te prace są wieloautorskie, ale w trzech spośród nich Pani Dorota Gotfryd jest pierwszym autorem, a w jednej z nich (*Phys. Rev B* z 2019 r.) drugim.

Cała rozprawa jest dość obszerna, bo liczy aż 173 strony. Ta stosunkowo duża jak na pracę z teorii objętość rozprawy wynika z zamierzonego przez Autorkę przedstawienia w niej nie tylko własnych wyników, ale także podsumowania dotychczasowej wiedzy na temat układów typu Kitajewa i splątania spinowo-orbitalnego.

Zasadnicza część rozprawy składa się z 6 rozdziałów, 6 dodatków oraz bibliografii liczącej 163 pozycje. Tytuły kolejnych rozdziałów są następujące: *Preface*, *Introduction to Kitaev-like systems*, *Magnetic ordered moment studies for Kitaev-like models*, *Introduction to spin-orbital entanglement*, *Spin-orbital entanglement evolution with the on-site spin-orbit coupling*, *Outlook*.

3. Ocena zawartości merytorycznej (*ogólna oraz szczegółowa dotycząc poszczególnych rozdziałów*)

Większość wyników przedstawionych w tej rozprawie została opublikowana w renomowanych czasopismach o zasięgu międzynarodowym, więc ich wysoką wartość merytoryczną potwierdzili już niezależni eksperci, czyli recenzenci. Jednocześnie jest dla mnie oczywiste, że Pani Dorota Gotfryd miała duży wkład w otrzymanie tych wyników. Swoje przekonanie opieram nie tylko na tym, że jest ona pierwszym autorem trzech z tych publikacji i drugim jednej z nich, ale również na tym w jaki sposób przedstawiła w rozprawie całą tematykę objętą tymi publikacjami, który według mojego rozeznania świadczy o głębokim zrozumieniu zawartego w nich materiału.

Rozprawa ta została napisana bardzo starannie z zachowaniem ciągłości rozumowania i podaniem szczegółowych wyjaśnień przedstawianych w niej zagadnień. Zarówno konstrukcja, treść jak i poszczególne fragmenty rozprawy są dopracowane i widać w tym troskę Autorki o pełne i jednocześnie przystępne przekazanie czytelnikowi całego zawartego w niej materiału. Mam wrażenie jakby Autorka chciała wszystko dogłębnie wyjaśnić, doprecyzować, żeby nie było żadnych niejasności. Oczywiście takie podejście można uważać za zaletę, ale w moim subiektywnym odczuciu niektóre fragmenty pracy można byłoby przedstawić nieco inaczej, w sposób ułatwiający percepcję uzyskanych wyników, gdyż miejscami było tak dużo szczegółów, że trochę utrudniały skupienie uwagi na głównym wątku. Chodzi mi tutaj przede wszystkim o rozbudowane opisy niektórych diagramów fazowych, których czytanie było dość nużące.

Dobrym pomysłem było moim zdaniem umieszczenie w rozprawie dwóch rozdziałów wprowadzających osobno do tematyki układów Kitajewa (rozdział 2) oraz do splątania spinowo-orbitalnego (rozdział 4). Dzięki temu czytelnik uzyskał możliwość nie tylko pełniejszego zapoznania się z dotychczasowym stanem wiedzy na tematy objęte rozprawą, ale także oswojenia się z dość jednak egzotycznymi układami typu Kitajewa. Bo trzeba przyznać, że fizyka opisana modelami typu Kitajewa jest dość skomplikowana i opanowanie tego materiału wymagało dużego wysiłku intelektualnego.

Bardzo pozytywnie oceniam też klamrową konstrukcję każdej z wyodrębnionych części rozprawy, polegającą na tym, że na początku rozdziałów wprowadzających (odpowiednio rozdz. 2 i 4) przedstawione są problemy do rozwiązania, natomiast w zakończeniach rozdziałów z oryginalnymi wynikami (odpowiednio rozdz. 3 i 5) nawiązuje się do tych problemów. Dzięki temu uzyskano jasny obraz tego co ta praca wniosła nowego w nasze zrozumienie badanych układów.

Pozytywny wpływ na wartość tej rozprawy ma też wyraźnie widoczna bardzo dobra znajomość języka angielskiego, którym Autorka posługuje się z dużą swobodą.

Moim zdaniem wszystko to świadczy o tym, że Pani Dorota Gotfryd jest osobą solidną, która podejmując się jakiegoś zadania wykonuje je bardzo dokładnie.

Uwagi na temat poszczególnych rozdziałów rozprawy

Rozdział 1: Preface

W rozdziale wstępnym (*Preface*) na 2 stronach bardzo precyzyjnie sformułowano cele i zakres rozprawy. Cele te podano w postaci pytań, na które Autorka będzie starała się wyczerpująco odpowiedzieć w tej rozprawie. Natomiast zakres pracy przedstawiono w formie krótkich podsumowań uzyskanych wyników osobno dla każdego z dwóch rozpatrywanych zagadnień.

Rozdział 2: *Introduction to Kitaev-like systems*

W tym rozdziale przedstawiono m.in. własności fizyczne związków Na_2IrO_3 i $\alpha\text{-RuCl}_3$, które okazują się być zbliżone do własności cieczy spinowych opisanych modelem Kitajewa i jego pochodnymi. Nie jest to jednak pełna zgodność, ponieważ w stanie podstawowym wymienione tu związki są uporządkowane magnetycznie, natomiast ciecze spinowe opisane modelem Kitajewa wykazują w stanie podstawowym makroskopową degenerację, co skutkuje brakiem uporządkowania.

Rozdział ten zgodnie z zamierzeniem Autorki spełnia rolę przewodnika, który ma zapoznać czytelnika z fizyką związaną z modelem Kitajewa w wymienionych tu związkach poczynając od pierwszej pracy Kitajewa aż do obecnego etapu badań eksperymentalnych i teoretycznych przedstawionych w kolejnym rozdziale. W związku z tym zebrano tutaj podstawowe rezultaty innych badaczy, a rozdział nabrał charakteru artykułu przeglądowego. Zdając sobie sprawę, że model Kitajewa nie jest powszechnie znany Pani Dorota Gotfryd postarała się aby zawarty w tym rozdziale materiał przedstawić w sposób jak najbardziej przystępny. W tym celu dodała w nim kilka swoich komentarzy i rysunków (np. Rys. 2.7, 2.16, 2.17).

Rozdział 3: *Magnetic ordered moment studies for Kitaev-like models*

To najdłuższy, liczący 68 stron rozdział, który wspólnie z rozdziałem 5 stanowi trzon rozprawy, ponieważ przedstawione są w nich oryginalne wyniki uzyskane przez Panią Dorotę Gotfryd i współpracowników. Prezentację tych wyników poprzedza podanie sposobu opisu uporządkowania magnetycznego za pomocą modeli efektywnych. Następnie przedstawiono zastosowane metody obliczeniowe, którymi są: diagonalizacja Hamiltonianu (nazwana tutaj - podobnie zresztą jak i w wielu innych publikacjach - ścisłą diagonalizacją, tak jakby mogła istnieć nieścisła diagonalizacja) oraz samouzgodniona teoria średniego pola na klastrze (jak rozumiem jest to podstawowa metoda wykorzystywana przez Autorkę). Za bardzo cenne uważam podanie przez Autorkę zarówno mocnych jak i słabych stron przedstawionych przez nią metod obliczeniowych.

Głównym problemem rozpatrywanym w tym rozdziale jest współzawodnictwo pomiędzy fazą cieczy spinowej Kitajewa a fazami uporządkowanymi magnetycznie. Występują tutaj cztery fazy uporządkowane: jedna ferromagnetyczna oraz trzy antyferromagnetyczne (*Neel*, *zigzag* oraz *stripy*). Większość wyników dotyczy modelu Kitajewa-Heisenberga (K-H), dla którego podano pełny diagram fazowy oraz przeanalizowano przejścia pomiędzy poszczególnymi fazami. Następnie zbadano model rozszerzony K-H- Γ - Γ' , w którym występują dodatkowe wyrazy związane z anizotropowym oddziaływaniem pomiędzy pseudospinami.

Bardzo pomysłowo skonstruowano diagramy fazowe tego cztero-parametrowego modelu w postaci kół, na których poszczególne obszary zaznaczono posługując się kolorami

z odpowiednią gradacją. O ile sam model K-H można było przedstawić w postaci okręgu, to włączenie parametru Γ przetworzono na odległość od środka tego okręgu, przy czym uczyniono to dla kilku wybranych wartości Γ' .

Opis i analiza diagramów fazowych są bardzo wnikliwe i świadczą o głębokim zrozumieniu przez Autorkę fizyki zakodowanej w modelach K-H oraz K-H- Γ - Γ' . Bardzo jasno i ciekawie Autorka wyjaśniła między innymi tzw. efekt parasola (*umbrella effect*). A w końcowej części tego rozdziału porównała wyniki obliczeń z danymi eksperymentalnymi.

Rozdział ten zamyka paragraf *Summary and conclusions*, w którym precyzyjnie wyszczególniono główne wnioski i osiągnięcia wynikające z przeprowadzonych badań.

Rozdział 4: *Introduction to spin-orbit entanglement*

Podobnie jak Rozdział 2 spełnia on rolę wprowadzenia w tematykę następującego po nim rozdziału przedstawiającego oryginalne wyniki Autorki i współpracowników. Tym razem dotyczą one splątania spinowo-orbitalnego w układach opisanych modelem Kugela-Khomskiego z dodatkowym wyrazem lokalnego sprzężenia spin-orbita.

W tym rozdziale Autorka najpierw ogólnie wyjaśnia na czym polega kwantowe splątanie na przykładzie spinowych stopni swobody, a następnie uzasadnia jak można w sposób ilościowy określić stopień takiego splątania przy pomocy entropii.

Rozdział ten zamyka paragraf opisujący splątanie spinowo-orbitalne na przykładzie prostego łańcucha z periodycznymi warunkami brzegowymi, dla którego skonstruowano diagram fazowy z zaznaczonymi fazami, w których występuje splątanie spinowo orbitalne.

Rozdział 5: *Spin-orbital entanglement evolution with the on-site spin-orbit coupling*

Ten drugi pod względem długości (liczący 33 strony) rozdział rozprawy zawiera opis oryginalnych wyników badań na temat wpływu lokalnego sprzężenia spinowo-orbitalnego na splątanie spinowo-orbitalne. Wyniki te dotyczą stosunkowo prostego układu jakim jest łańcuch jednowymiarowy opisany modelem zawierającym wyrazy spinowo-orbitalne typu Kugela-Khomskiego oraz jednowęzłowe sprzężenia spin-orbita.

Na początku tego rozdziału bardzo klarownie sformułowano cel tych badań, opisano model i zastosowane metody obliczeniowe z wyszczególnieniem wielkości charakteryzujących stopień splątania, takimi jak entropia von Neumanna oraz międzywęzłowa spinowo-orbitalna funkcja korelacyjna.

Ewolucję splątania spinowo-orbitalnego przedstawiono w postaci diagramów w zależności od parametrów oddziaływania: 1) orbital-orbital α oraz 2) spin-spin β na sąsiednich węzłach, a także 3) stałej sprzężenia lokalnego spin-orbita λ . Najbardziej reprezentatywny diagram

ukazujący główną część uzyskanych rezultatów został przedstawiony na rysunku 5.9, na którym zaznaczone są obszary o różnym stopniu splątania w zależności od stałej λ wzdłuż linii $\alpha + \beta = 0$.

Następnie Autorka wyprowadza model efektywny w granicy dużego sprzężenia spin-orbita, którym jest model XXZ i analizuje proces splątania w tym modelu oraz porównuje otrzymane wyniki z uzyskanymi w przypadku ogólnym.

W podsumowaniu tego rozdziału Autorka wymienia i opisuje cztery różne typy ewolucji splątania spinowo orbitalnego ze zmianą stałej sprzężenia λ w zależności od wartości parametrów α i β .

Jednym z ciekawszych wyników jest tutaj moim zdaniem pokazanie, że splątanie kwantowo-orbitalne może zanikać nawet w przypadku dużego lokalnego sprzężenia spin-orbita ($\lambda > \lambda_{\text{crit}}$), jednak tylko pod warunkiem, gdy w stanie podstawowym modelu efektywnego fluktuacje kwantowe zanikają.

Rozdział 6: *Outlook*

W tym ostatnim rozdziale przedstawiono skrótowo (podobnie jak w rozdziale wstępnym, także na 2 stronach) perspektywy oraz przewidywane kierunki dalszych badań. Dodano tutaj również krótką dyskusję na temat użyteczności oraz ograniczeń głównej metody obliczeniowej stosowanej przez Autorkę.

4. Najważniejsze osiągnięcia

Do najważniejszych osiągnięć przedstawionych w recenzowanej rozprawie zaliczam:

- a) Dość precyzyjne i wiarygodne - bo oparte na uzupełniających się obliczeniach wykonanych różnymi metodami - wyznaczenie diagramów fazowych modelu Kitajewa-Heisenberga i jego wersji rozszerzonych w pełnym zakresie parametrów oddziaływania.
- b) Wykazanie istnienia różnych typów ewolucji splątania spinowo-orbitalnego ze wzrostem sprzężenia lokalnego spin-orbita oraz wytłumaczenie dlaczego sprzężenie spin-orbita może w zależności od parametrów Hamiltonianu (w modelu Kugela-Khomskiego z ze sprzężeniem spin-orbita) zarówno wzmacniać jak i osłabiać splątanie spinowo-orbitalne.

5. Podsumowanie i formuła końcowa

Podsumowując chcę wyrazić swoje uznanie dla Pani mgr Doroty Gotfryd za wykonanie bardzo trudnego zadania, jakim było gruntowne przebadanie i opisanie własności różnych wersji modelu Kitajewa-Heisenberga oraz modelu Kugela-Khomskiego z lokalnym sprzężeniem spin-

orbita; zwłaszcza za wyznaczanie wielu skomplikowanych diagramów fazowych i ich wnikliwą analizę.

Obliczenia te wymagały dobrego opanowania zwłaszcza metod numerycznych, ale również analitycznych. Analiza i interpretacja otrzymanych wyników są wg mnie głębokie i świadczą o dojrzałości naukowej Autorki, która wykazała się bardzo dobrym rozeznaniem w tematyce związanej z rozprawą oraz wiedzą dotyczącą m.in. teorii magnetyzmu. Uważam, że uzyskanie przedstawionych w rozprawie diagramów fazowych i ich analiza stanowią istotny wkład w zrozumienie zjawisk zachodzących w układach nieuporządkowanych, a w szczególności w cieczach spinowych, w tym m.in. zjawiska splątania spinowo-orbitalnego.

W mojej opinii recenzowana rozprawa doktorska spełnia wszystkie kryteria wymagane w Ustawie o tytule i stopniach naukowych i dlatego wnoszę o dopuszczenie Pani mgr Doroty Gotfryd do dalszych etapów przewodu doktorskiego.


Romuald Lemański