



Prof. dr hab. Maciej Maśka
Instytut Fizyki Teoretycznej
Wydział Podstawowych Problemów Fizyki
Politechnika Wrocławska

Recenzja rozprawy doktorskiej pana mgr. Adama Kłosińskiego p.t.:

Orbital effects in elemental chalcogens

Recenzowana rozprawa doktorska dotyczy nietrywialnej fizyki obserwowanej w układach, w których orbitalne stopnie swobody odgrywają znaczącą rolę. W szczególności, poświęcona jest ona własnościom, zwłaszcza topologicznym, dwóch pierwiastkowych chalcogenów: selenu i telluru.

Rozprawa powstała pod opieką prof. Krzysztofa Wohlfelda w Instytucie Fizyki Teoretycznej Uniwersytetu Warszawskiego. Została napisana w języku angielskim, składa się na nią pięć rozdziałów, wliczając w to wprowadzenie w tematykę rozprawy. Główne części pracy to wstęp omawiający strukturę krystaliczną i elektronową badanych układów, prezentacja stanu łańcuchów chalcogenów z orbitalnymi falami gęstości, krótkie omówienie jednowymiarowych izolatorów topologicznych oraz prezentacja wyników dotyczących topologicznych własności łańcuchów chalcogenów. Praca ma 106 stron i zawiera liczącą 66 pozycje bibliografię.

Recenzję rozpocznę od przeglądu zawartości poszczególnych rozdziałów rozprawy. Pierwszy rozdział ("Introduction") jest w zasadzie skrótowym wprowadzeniem do mechanizmów, poprzez które elektrony, wypełniając poszczególne stany, zmieniają własności materiałów. Prócz roli obsadzania poszczególnych orbitali, wspomniane zostały też zjawiska takie jak wpływ pola krystalicznego czy efekt Jahna-Tellera. Druga część tego rozdziału to omówienie zawartości kolejnych rozdziałów.

W rozdziale drugim ("Preliminaries") wprowadzane są modele, których w(y)prowadzenie i badanie było treścią pracy doktorskiej. Ze względu na nietypową strukturę krystaliczną analizowanych układów, w których atomy tworzą dwuwymiarowe sieci helikalnych łańcuchów, nietrywialne jest wyliczenie parametrów wieloorbitalowych hamiltonianów. Jest to zadanie stosunkowo trudne nawet w przypadku pominięcia – tak jak to zostało zrobione w rozprawie – przeskoków elektronów pomiędzy łańcuchami. Na początku rozdziału doktorant



HR EXCELLENCE IN RESEARCH



Politechnika Wrocławska
Wybrzeże Wyspiańskiego 27
50-370 Wrocław

budynek A-1, pok. 234

Tel: +48 71 320 25 79,
+48 71 320-23-95

dziekan.wppt@pwr.edu.pl
http://wppt.pwr.edu.pl

REGON: 000001614
NIP: 896-000-58-51

Nr konta:
37 1090 2402 0000 0006 1000 0434



definiuje parametry określające poszczególne łańcuchy, takie jak kąty wiązań czy kąty położenia poszczególnych atomów w spirali. Zarówno opisy jak i ilustrujące je rysunki są klarowne i znacznie ułatwiają zrozumienie dalszej części rozprawy. Jedynie wydaje mi się, że w przypadku Fig. 2.1 "*helix pitch*" powinien odnosić się do wielkości $3d$, a nie d , ponieważ zazwyczaj oznacza on skok spirali.

W oparciu o słynne obliczenia Slatra i Kostera doktorant konstruuje ogólny hamiltonian w przybliżeniu ciasnego wiązania. Robi to wyliczając elementy macierzowe tunelowania pomiędzy różnymi orbitalami typu p . Aby umożliwić/ułatwić prowadzenie tych obliczeń, wprowadza kilka różnych baz, które w niektórych sytuacjach upraszczają postać hamiltonianu. Generalizuje także twierdzenie Blocha tak, aby mogło być zastosowane do układu o strukturze helikalnej. Pod koniec drugiego rozdziału wprowadzane do hamiltonianów jest także sprzężenie spinowo-orbitalne.

Tak przygotowany „warsztat” w trzecim rozdziale ("*Orbital density waves in chalcogen chains*") jest wykorzystywany do poszukiwania stanu podstawowego łańcucha chalcogenów. Stan ten jest poszukiwany najpierw w układzie nieoddziałującym, a następnie w obecności oddziaływania kulombowskiego. W obu przypadkach znajdowany jest stan, określony jako *orbital density waves*, gdzie zajęcie poszczególnych orbitali typu p jest modulowane wzdłuż łańcucha. Hamiltonian nieoddziałującego łańcucha upraszcza się, jeśli macierz obrotu rozwinąć do wyrazów liniowych wokół kąta wiązania równego 90° . Porównanie struktury pasmowej tak zlinearyzowanego modelu wykazuje bardzo dobrą zgodność ze strukturą wyznaczoną przy użyciu pełnego modelu.

W przypadku niezerowego oddziaływania stan układu znajdowany jest w przybliżeniu średniego pola. Dla niezbyt silnego oddziaływania, a ten reżim obejmuje wartości przewidywane dla chalcogenów, otrzymane orbitalne fale gęstości mają ten sam charakter co rozwiązanie dla nieoddziałującego układu. Natomiast przy wzroście oddziaływania, dla $U = 3t$ następuje przejście do jakościowo innego rozwiązania, choć to samozgodne rozwiązanie ciągle przyjmuje formę orbitalnych fal gęstości. Duża liczba wielkości, które w ogólnym przypadku powinny być znalezione w sposób samouzgodniony, uniemożliwiłaby efektywne znalezienie rozwiązań. Dlatego też narzucone zostały pewne założenia dotyczące postaci rozwiązania, które tą liczbę w obliczeniach znacząco zmniejszyły. Układy równań nieliniowych rozwiązywane były w sposób iteracyjny, a następnie odrzucane były rozwiązania, które nie odpowiadały minimum energii. Zastosowane podejście jest jednym z typowych stosowanych w takich przypadkach. Warto jednak byłoby



HR EXCELLENCE IN RESEARCH



Politechnika Wrocławska

Wybrzeże Wyspiańskiego 27
50-370 Wrocław

budynek A-1, pok. 234

Tel: +48 71 320 25 79,
+48 71 320-23-95

dziekan.wppt@pwr.edu.pl
<http://wppt.pwr.edu.pl>

REGON: 000001614

NIP: 896-000-58-51

Nr konta:

37 1090 2402 0000 0006 1000 0434



zastanowić się nad jego stosowalnością. Przy okazji pojawia się tu kilka kwestii, które byłoby dobrze wyjaśnić:

- 1) W trakcie obliczeń parametry helisy tworzonej przez atomy przyjmowane są z danych eksperymentalnych. Czy gdyby złuzować ten warunek i pozwolić układowi na deformację tych parametrów, np. kątów α i β , byłaby szansa na otrzymanie stabilnych konfiguracji, tj. takich, przy których energii osiąga minimum dla danych wartości kątów? Intuicja podpowiada, że model jest na to zbyt prosty, ale może taka analiza mogłaby wnieść informacje czego w modelu brakuje? Czy można by spodziewać się, że oddziaływanie pomiędzy łańcuchami coś tu pomoże?
- 2) Rozwiązanie w przybliżeniu średniego pola znajdujące się w zerowej temperaturze. Można przypuszczać, że badane w ten sposób orbitalne fale gęstości będą istniały także w pewnych skończonych temperaturach, co wynika z przeszacowywania temperatury krytycznej przez przybliżenie średniego pola. Ale z drugiej strony twierdzenie Mermin-Wagnera silnie ogranicza możliwość istnienia dalekozasięgowego porządku w skończonych temperaturach w układach niskowymiarowych. Które z założeń wspomnianego twierdzenia nie jest spełnione w realnych układach? Czy łamana symetria nie jest symetrią ciągłą, a może wpływ przeskoków pomiędzy łańcuchami zwiększa wymiarowość albo coś jeszcze innego?
- 3) Wiadomo, że przybliżenie średniego pola jest tym dokładniejsze, im więcej sąsiadów posiada każdy węzeł sieci, stając się dokładne w granicy nieskończonej liczby sąsiadów. Tymczasem w badanym przypadku mamy do czynienia z układem jednowymiarowym, czyli z bardzo małą liczbą sąsiadów. Pewną pomocą w uwiarygodnieniu tych wyników jest porównanie z wynikami otrzymanymi metodą grupy renormalizacyjnej macierzy gęstości (DMRG). Porównanie to jednak nie jest proste, ponieważ wprowadzenie przybliżenia średniego pola w jawny sposób łamie symetrię, co nie występuje w przypadku obliczeń opartych o DMRG. Co więcej, wprowadzając to przybliżenie narzucone zostały dodatkowe warunki redukujące liczbę samozgodnie wyliczanych wielkości. Dlatego wydaje się, że zamiast bezpośredniego porównania obsadzenia poszczególnych orbitali, może lepsze byłoby porównanie pewnych funkcji korelacyjnych, które w analogiczny sposób można zdefiniować w ramach obu podejść, np. $\langle \hat{n}_{x,i} \hat{n}_{y,j} \rangle$?
- 4) Jednowymiarowy układ z helikalną strukturą zlokalizowanych momentów magnetycznych sprzężonych z wędrownymi elektronami poprzez zależną od spinu transformację cechowania jest równoważny układowi w jednorodnym polu



HR EXCELLENCE IN RESEARCH



Politechnika Wrocławska

Wybrzeże Wyspiańskiego 27
50-370 Wrocław

budynek A-1, pok. 234

Tel: +48 71 320 25 79,
+48 71 320-23-95

dziekan.wppt@pwr.edu.pl
<http://wppt.pwr.edu.pl>

REGON: 000001614

NIP: 896-000-58-51

Nr konta:

37 1090 2402 0000 0006 1000 0434



magnetycznym ze sprzężeniem spinowo-orbitalnym [PRB **82**, 045127 (2010), PRL **111**, 186805 (2013)-Supp.Mat.]. Pewnie to zbyt daleka analogia, ale czy można by pomyśleć o podobnej transformacji w przypadku przedstawionej w rozprawie helikalnej struktury łańcucha chalcogenów?

Czwarty rozdział ("*Interlude: One-dimensional topological insulators*") jest w zasadzie jedynie wprowadzeniem do zagadnień, które są tematem kolejnego rozdziału. Rozdział rozpoczyna się od omówienia ogólnej klasyfikacji izolatorów topologicznych ze względu na obecność poszczególnych symetrii. Dalsza część jest skoncentrowana najpierw wokół standardowego modelu Su-Schrieffer-Heegera (SSH), a następnie wokół jego odmiany z komórką elementarną zawierającą nie dwa, a trzy węzły (SSH-3). Własności tego modelu przedstawione są w szczegółowy sposób, ponieważ w kolejnym rozdziale doktorant pokazuje, że łańcuch chalcogenów może być opisany właśnie przy pomocy takiego modelu. Dlatego istotne jest, że także w tym modelu występują fazy topologiczne ze stanami brzegowymi, choć mechanizm ich powstawania nieco odbiega od tego w standardowym modelu SSH. Rozdział jest czytelny i użyteczny w kontekście dalszej aplikacji modelu SSH-3 do badanych układów. Jedynie myślę, że w rozdziale tym warto było zacytować pracę A. Anastasiadis *et al.*, PRB **106**, 085109 (2022), w której dość dokładnie badane były własności tego modelu.

Ostatni, piąty rozdział ("*Topology of chalcogen chains*"), poświęcony jest możliwości występowania stanów topologicznych w badanych w pracy chalcogenach. Pomijając sprzężenie pomiędzy łańcuchami, analizowane są trzy modele łańcuchów. Pierwszy z nich to pełny model, wprowadzony w rozdziale drugim. Drugim to *cubic chain model*, który otrzymuje się przy założeniu, że kąt wiązania $\alpha = 90^\circ$. Okazuje się, że w takim wypadku pełny model rozpada się na trzy niezależne modele, z których każdy opisywany jest hamiltonianem SSH-3. Ostatni to tzw. orbitalny model SSH, w którym kąt pomiędzy położeniami kolejnych atomów spirali wynosi $\beta = 180^\circ$, czyli wszystkie atomy leżą w jednej płaszczyźnie tworząc zygzakowatą strukturę. Wszystkie te modele badane są w limicie braku oddziaływania, czego uzasadnieniem może być wynik z rozdziału drugiego, pokazujący, że stan podstawowy dla realistycznych wartości oddziaływania U ma ten sam charakter, co rozwiązanie dla układu nieoddziałującego. Najciekawszą część tego rozdziału to podrozdział 5.2 o tytule podobnym do tytułu całego rozdziału, "*Topology of the chalcogen chain model*", ale o treści ograniczonej do własności topologicznych pełnego modelu łańcucha chalcogenów, bez uproszczeń wprowadzanych w modelu *kubicznym* albo w orbitalnym modelu SSH. Porównanie z tymi dwoma modelami jest treścią krótkich podrozdziałów 5.3 oraz 5.4.



HR EXCELLENCE IN RESEARCH



Politechnika Wrocławska
Wybrzeże Wyspiańskiego 27
50-370 Wrocław

budynek A-1, pok. 234

Tel: +48 71 320 25 79,
+48 71 320-23-95

dziekani.wppt@pwr.edu.pl
<http://wppt.pwr.edu.pl>

REGON: 000001614
NIP: 896-000-58-51
Nr konta:
37 1090 2402 0000 0006 1000 0434



Podrozdział 5.2 rozpoczyna się od zademonstrowania, że model łańcucha chalcogenów przewiduje istnienie stanów wewnątrzszczelinowych. Dalej, analizowane jest czy te stany mogą mieć własności topologiczne. Ponieważ badany hamiltonian nie posiada symetrii chiralnej, nie jest oczywiste czy da się dla nich zdefiniować niezmiennik topologiczny. Posługując się podejściem zaproponowanym przez Lau, Brinka i Ortixa w pracy PRB **94**, 165164 (2016), doktorant wprowadza pewien niezmiennik, argumentując w ten sposób, że stany te rzeczywiście są topologicznie nietrywialne. Niezmiennik ten ma być odpowiednikiem niezmiennika zdefiniowanego w wyżej wspomnianej pracy, choć ta równoważność nie jest w sposób oczywisty pokazana ani w rozprawie, ani w publikacji doktoranta, na której ta część rozprawy jest oparta.

W kolejnej części podrozdziału doktorant bada *bulk-boundary correspondence*, czyli czy istnienie niezmiennika topologicznego pociąga za sobą istnienie stanów brzegowych. Jest to nietrywialne ze względu na brak w modelu symetrii chiralnej. Aby zbadać potencjalne stany brzegowe doktorant zakłada przestrzenną zmianę parametrów modelu tak, aby część układu znajdowała się w fazie topologicznie trywialnej, a część w nietrywialnej. Podobne podejście stosuje się np. w przypadku zwykłego modelu SSH. Przez analizę rozwiązań jednorodnego ciągłego równania Schrödingera pokazano, że pomimo braku symetrii chiralnej model przewiduje istnienie „odpornych” stanów końcowych ulokowanych w przerwie pomiędzy pasmem przewodnictwa a pasmem walencyjnym.

W podrozdziale 5.3 pokazano, że w przypadku *cubic chain model*, prócz niezmiennika występującego w ogólnym modelu łańcucha, występuje dodatkowo inny niezmiennik, którego obecność wynika z braku sprzężenia spinowo-orbitalnego, a więc z rozsprzężenia spinowych stopni swobody. W efekcie stany brzegowe w tym modelu są całkowicie orbitalnie spolaryzowane. W przypadku orbitalnego modelu SSH, topologia którego jest tematem kolejnego podrozdziału, stany końcowe są takie same jak w typowym modelu SSH, co wynika z obecności w tym modelu chroniącej je symetrii chiralnej.

Rozprawę kończy krótkie podsumowanie rozdziału dotyczącego topologii łańcuchów chalcogenowych. Nie ma natomiast podsumowania całej rozprawy. Trochę szkoda, bo przydałoby się ulokowanie wyników uzyskanych w pracy doktorskiej w szerszym kontekście, zwłaszcza warto byłoby szerzej przedyskutować kwestię eksperymentalnej weryfikacji czy implementacji przedstawionych w rozprawie przewidywań.



HR EXCELLENCE IN RESEARCH



Politechnika Wrocławska
Wybrzeże Wyspiańskiego 27
50-370 Wrocław

budynek A-1, pok. 234

Tel: +48 71 320 25 79,
+48 71 320-23-95

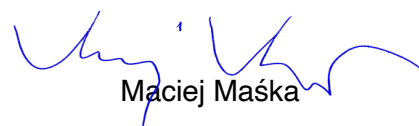
dziekan.wppt@pwr.edu.pl
<http://wppt.pwr.edu.pl>

REGON: 000001614
NIP: 896-000-58-51
Nr konta:
37 1090 2402 0000 0006 1000 0434



Na koniec warto wspomnieć stosunkowo bogaty dorobek publikacyjny doktoranta. Jest on współautorem czterech prac opublikowanych w *Physical Review B*, przy czym w przypadku trzech jest pierwszym z autorów. Ponadto, jedna praca jest w bazie *arXiv*.

Podsumowując stwierdzam, że zaprezentowane w rozprawie pana mgr. Adama Kłosińskiego wyniki stanowią oryginalne rozwiązanie problemu naukowego, tym samym rozprawa spełnia wymagania stawiane rozprawom doktorskim w *Ustawie o stopniach naukowych i tytule naukowym*. Wnoszę więc o dopuszczenie doktoranta do dalszych etapów przewodu doktorskiego.



Maciej Maśka



HR EXCELLENCE IN RESEARCH

Evaluated by
IEP INSTITUTIONAL
EVALUATION
PROGRAMME
www.iep-qaa.org

Politechnika Wrocławska

Wybrzeże Wyspiańskiego 27
50-370 Wrocław

budynek A-1, pok. 234

Tel: +48 71 320 25 79,
+48 71 320-23-95

dziekan.wppt@pwr.edu.pl
<http://wppt.pwr.edu.pl>

REGON: 000001614

NIP: 896-000-58-51

Nr konta:

37 1090 2402 0000 0006 1000 0434