

Kraków, dn. 17 lipca 2023 r.

dr hab. Przemysław Piekarczyk
Instytut Fizyki Jądrowej
Polskiej Akademii Nauk
ul. Radzikowskiego 152
31-342 Kraków

Recenzja rozprawy doktorskiej mgr. Adama Kłosińskiego
pt. „Orbital effects in elemental chalcogens”

1. Tematyka i cel rozprawy doktorskiej.

Podstawowe własności materiałów powiązane są z transportem ładunku elektrycznego oraz magnetycznym uporządkowaniem spinów elektronów. Orbitalne stopnie swobody odgrywają również ważną rolę w wielu rodzajach materiałach, wpływając zarówno na stany elektronowe, jak i strukturę sieci krystalicznej. Najlepszym przykładem są związki zawierające metale przejściowe, takie jak tlenki metali $3d$, gdzie silne korelacje elektronowe współgrają z efektami orbitalnymi i sieciowymi (efekt Jahn-Tellera), prowadząc do nowych faz z uporządkowaniem ładunkowo-orbitalnym. Również materiały gdzie istotną rolę odgrywają orbitale typu p cieszą się coraz większym zainteresowaniem, głównie ze względu na ich własności topologiczne. Przykładem są izolatory topologiczne, których własności elektronowe zostały przewidziane teoretycznie, a następnie potwierdzone eksperymentalnie. Objętościowe stany elektronowe, posiadające przerwę energetyczną typową dla izolatorów, różnią się od metalicznych stanów powierzchniowych mających kształt stożków Diraca. Ze względu na silne sprzężenie spin-orbita (SOC) stany te wykazują rozszczepienie spinowe prowadzące do unikalnych własności topologicznych i transportowych.

Celem przedstawionej rozprawy jest zbadanie efektów orbitalnych w modelach teoretycznych opisujących własności dwóch pierwiastków należących do grupy chalcogenów, selenu i telluru. Podstawowym elementem strukturalnym tych materiałów są spiralne łańcuchy atomowe, które można opisywać przy pomocy jednowymiarowych modeli, uwzględniających orbitale elektronowe typu p . Główne cele badawcze dotyczą wpływu międzyorbitalnego oddziaływania kulombowskiego (U) oraz SOC na własności stanu podstawowego badanych modeli.

2. Omówienie treści rozprawy.

Praca doktorska napisana jest w języku angielskim i składa się z pięciu rozdziałów, Appendixu z tabelą stosowanych skrótów oraz bibliografii zawierającej 66 referencje. Całkowita ilość stron wynosi 106. Wstęp do pracy opisuje podstawowe czynniki i rodzaje oddziaływań, które decydują o własnościach elektronowych i topologicznych materiałów. Podkreślone jest znaczenie orbitalnych stopni swobody w różnych rodzajach układów elektronowych. Rozdział wstępny przedstawia również główne cele i zawartość poszczególnych części rozprawy. W rozdziale 2 zatytułowanym Preliminaries opisane zostały podstawowe własności orbitali p oraz modele i symetrie łańcuchów spiralnych. Szczególnym przypadkiem jest łańcuch chalcogenowy, jaki tworzą atomy selenu lub telluru w strukturze o symetrii trygonalnej. Rozważane są dwa przypadki: Hamiltonian bezspinowy oraz model uwzględniający spin i SOC.

Rozdział 3 zawiera wyniki badań teoretycznych dla bezspinowego modelu łańcucha chalcogenowego. Na początku wyznaczono strukturę pasmową dla modelu bez oddziaływania kulombowskiego i pokazano, że zlinearyzowana wersja Hamiltonianu daje praktycznie taki sam wynik, jak oryginalny Hamiltonian. Zbadano własności stanu podstawowego, który posiada porządek orbitalny, o periodyczności takiej samej jaką ma łańcuch chalcogenowy, nazywany falą gęstości orbitalnej (ODW). W następnym kroku przeprowadzono obliczenia dla modelu z oddziaływaniem kulombowskim ($U > 0$) w przybliżeniu Hartree, badając jego wpływ na stan podstawowy. Dodatkowa analiza pokazała, że otrzymane wyniki są zgodne z obliczeniami metodą DMRG dla otwartego łańcucha chalcogenowego.

W rozdziale 4 omówione zostały podstawowe rodzaje i własności izolatorów topologicznych oraz dwa modele jednowymiarowe: model Su-Schrieffer-Heegera (SSH) i jego rozszerzenie SSH-3. Przeanalizowane zostały symetrie tych modeli, struktury pasmowe oraz stany końcowe. Rozdział ten stanowi wprowadzeniem do rozdziału 5, w którym przedstawiono wyniki badań dotyczące własności topologicznych łańcucha chalcogenowego. W rozdziale 5 rozważane są trzy modele: model łańcucha chalcogenowego, łańcucha kubicznego, który można powiązać z modelem SSH-3, oraz orbitalny model SSH. Przebadany został tutaj wpływ SOC na strukturę pasmową i własności topologiczne. Autor rozprawy analizuje również zachowanie stanów wewnątrz przerwy energetycznej (stanów końcowych) w pobliżu punktów strefy Brillouina, gdzie ta przerwa znika. Porównane zostały gęstości orbitalne stanów końcowych, w funkcji odległości od końca łańcuch, dla otwartego

łańcucha chalcogenowego i kubicznego, wyznaczone metodą dokładnej diagonalizacji (ED).

3. Ocena merytoryczna.

Praca doktorska mgr. Adama Kłosińskiego zawiera trzy rozdziały teoretyczne (1, 2 i 4), które stanowią bardzo dobre wprowadzenie do tematyki badawczej oraz rozpatrywanych modeli. Pozwala to zrozumieć założone cele oraz prześledzić kolejne etapy badań. Poszczególne zagadnienia teoretyczne przedstawione są klarownie i w sposób bardzo systematyczny, a załączone rysunki dobrze ilustrują analizowane struktury i stosowane w modelach bazy orbitali p . W mojej opinii materiał zawarty w tych rozdziałach prezentuje ogólną wiedzę teoretyczną Autora w zakresie fizyki ciała stałego i stosowanych w tym obszarze modeli obliczeniowych.

Najważniejsze wyniki badań przedstawionych w rozdziale 3 dotyczą własności stanu podstawowego modelu łańcucha chalcogenowego, będącego podstawowym elementem struktury krystalicznej selenu i telluru. W modelu bez oddziaływania kulombowskiego stan podstawowy posiada porządek orbitalny (ODW-2-1-1), gdzie dwa orbitale p są częściowo obsadzone. Wykazano, że stan podstawowy nie zmienia się dla małych wartości U , ale przy wartości krytycznej ($U=3t$) zachodzi przejście fazowe do nowego stanu ODW-2-2-0, w którym jeden z orbitali p jest praktycznie nie obsadzony. Realistyczne wartości parametru U dla badanych chalcogenów są mniejsze niż wyznaczona wartość krytyczna.

W rozdziale 5 zbadane zostały własności topologiczne oraz stany końcowe łańcucha chalcogenowego. Najważniejszym osiągnięciem tych badań jest pokazanie, że struktura pasmowa łańcucha może być opisana inwariantem topologicznym typu Lau-Brink-Ortiz. Dla realistycznych wartości parametru SOC inwariant przyjmuje wartość 1, co oznacza nietrywialny stan topologiczny. Inwariant ten powiązany jest z symetrią obrotu o 180 stopni wokół osi prostopadłej do łańcucha. Powyżej wartości krytycznej parametru SOC, inwariant przyjmuje wartość 0, czyli układ przechodzi do stanu o trywialnej topologii, w którym znika przerwa energetyczna. Stany końcowe, występujące w łańcuchu otwartym, są orbitalnie spolaryzowane i wykazują eksponencjalny zanik wraz z odległością od końca łańcucha.

Wyniki przedstawione w rozdziałach 3 i 5 są istotne w kontekście analizy struktury kryształów selenu i telluru oraz własności topologicznych tych materiałów. Nasuwa się tutaj pytanie o własności topologiczne rzeczywistych materiałów, które są układami trójwymiarowymi? Czy można przewidzieć, jak zmieniają się podstawowe charakterystyki stanu podstawowego badanych układów (przerwa energetyczna, obsadzenie orbitali, stany

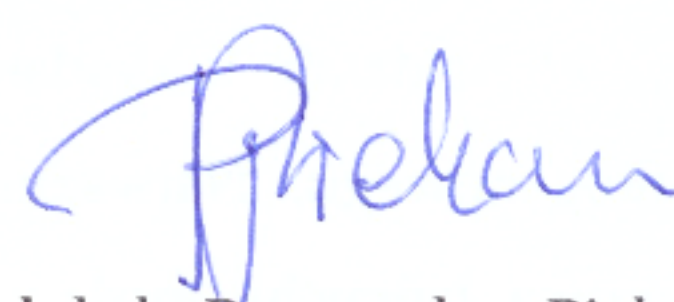
końcowe), jeżeli uwzględni się oddziaływanie między łańcuchami chalcogenowymi?

Prezentacja wyników w rozprawie doktorskiej jest bardzo klarowna. Rysunki są bardzo starannie wykonane i dobrze opisane. Jedyne błędy jakie zauważyłem to prezentacja tych samych wykresów z obliczeń DMRG na rysunkach 3.9(a) i 3.9(b).

Biorąc pod uwagę wysoki poziom badań oraz sposób ich prezentacji, moja ocena rozprawy doktorskiej dr. Adama Kłosińskiego jest bardzo pozytywna,

4. Wniosek końcowy.

W mojej opinii przedstawiona do oceny rozprawa doktorska stanowi znaczny wkład do badań własności elektronowych i topologicznych pierwiastków należących do grupy chalcogenków. Uważam, że rozprawa spełnia wszystkie kryteria oraz wymagania stawiane pracom doktorskim - prezentuje ogólną wiedzę teoretyczną kandydata w dyscyplinie nauki fizyczne oraz umiejętność samodzielnego prowadzenia pracy naukowej. Przedstawione w rozprawie doktorskiej wyniki stanowią oryginalne rozwiązanie kilku problemów naukowych dotyczących własności łańcuchów chalcogenowych. Dlatego wnoszę do Rady Naukowej Dyscypliny Nauki Fizyczne Uniwersytetu Warszawskiego o dopuszczenie Pana mgr. Adama Kłosińskiego do dalszych etapów przewodu doktorskiego.



dr hab. Przemysław Piekarczyk