



Ocena rozprawy doktorskiej mgr Joanny Wincukiewicz
nt. *Magnesy topologiczne oparte na związku Bi_2Te_3 domieszkowanym Mn*

Odkrycie w 2007 roku pierwszego trójwymiarowego izolatora topologicznego stało się zaczynem dla niezwykle dynamicznego rozwoju nowej gałęzi fizyki zwanej fizyką materii topologicznej. Zaawansowane badania eksperymentalne i teoretyczne rozmaitych stanów topologicznych prowadzone są obecnie przez niezliczoną liczbę fizyków i chemików, materiałoznawców i inżynierów w nieomal każdym znaczącym ośrodku naukowym na świecie. Przedmiotem zainteresowania są przede wszystkim izolatory i semimetale, w których nietrywialne stany elektronowe chronione są przez rozmaite więzy topologiczne. W ostatnim czasie uwaga badaczy skupia się przede wszystkim na materiałach, w których nietrywialna topologia pasm elektronowych łączy się z własnościami kooperatywnymi, takimi jak dalekozasięgowy magnetyzm lub/i nadprzewodnictwo. Wynika to z oczekiwania, iż dodatkowa funkcjonalność takich układów znajdzie swoje istotne zastosowania praktyczne, np. w przyrządach spintronicznych (elementy pamięci, sensory, przełączniki), czy też układach nadprzewodnikowych użytecznych w informatyce kwantowej.

Przedłożona mi do oceny rozprawa doktorska Pani mgr Joanny Wincukiewicz, doktorantki na Wydziale Fizyki Uniwersytetu Warszawskiego, wykonana pod kierunkiem dr hab. Agnieszki Wołoś, profesora tegoż Uniwersytetu, włącza się do tego najbardziej obecnie nośnego nurtu badań materii topologicznej. Podstawowym zadaniem postawionym przed Doktorantką było określenie roli nieporządku strukturalnego w magnetycznych izolatorach topologicznych na bazie kryształów Bi_2Te_3 domieszkowanych atomami Mn, gdzie w sposób samorganizowany tworzą się bloki o nominalnym składzie MnBi_2Te_4 . Dodatkowym przedmiotem Jej badań było sprawdzenie, czy kontrolowana zmiana położenia poziomu Fermiego w tych układach pociąga za sobą zmiany w ich własnościach magnetycznych i magnetotransportowych, potencjalnie wpływając w ten sposób na ich charakterystyki topologiczne.

Rozprawa doktorska mgr Joanny Wincukiewicz została napisana w języku polskim. Czyta się ją z przyjemnością z uwagi na (nieomal) bezbłędną polszczyznę, jak też jasność wywodu. Pewne drobne uchybienia w tej materii (niektóre przytaczam poniżej), nie zmieniają mojej wysokiej oceny poprawności językowej tego opracowania. Rozprawa cechuje się też ładną szatą graficzną. Rysunki i tabele są w większości przejrzyste i czytelne, z podpisami dobrze opisującymi ich zawartość. Warto zwrócić uwagę, iż nieomal wszystkie ilustracje pochodzą z opublikowanych artykułów naukowych, bądź z udziałem Doktorantki, bądź innych autorów, i każdorazowo opatrzone są stosownymi odwołaniami literaturowymi, a często nawet informacją o prawach autorskich należących do wydawnictw.

Rozprawa liczy łącznie 132 strony, z których pierwszych siedemnaście zawiera streszczenie rozprawy w języku polskim i angielskim, podziękowania dla osób wspierających

Doktorantkę w Jej pracach badawczych, spis treści, wykaz użytych akronimów, a wreszcie motywację do podjęcia badań stanowiących przedmiot pracy doktorskiej.

Zasadniczą część rozprawy stanowi osiem rozdziałów, z których pierwszy przedstawia wprowadzenie do fizyki materii topologicznej, drugi jest prezentacją aktualnej wiedzy na temat izolatorów topologicznych Bi_2Te_3 domieszkowanych atomami manganu, a trzeci opisuje techniki eksperymentalne wykorzystane przez Doktorantkę w Jej pracy doktorskiej. Rozprawę otwiera prezentacja podstawowych pojęć teoretycznych z obszaru topologii, takich jak faza Berry'ego, krzywizna Berry'ego, liczba Czerna, oraz ich znaczenie w opisie zjawisk topologicznych w materii skondensowanej. Przypomniane są pierwsze realizacje nietrywialnej topologii w ciele stałym, tj. całkowity kwantowy efekt Halla, kwantowy spinowy efekt Halla, a wreszcie anomalny kwantowy efekt Halla. Zdefiniowane zostały niezmienniki topologiczne, które charakteryzują dwu- i trójwymiarowe izolatory topologiczne. Sposób ujęcia tej rozległej i złożonej problematyki, dobór zaprezentowanych informacji, jak i bogactwo cytowanej literatury świadczą o szerokiej wiedzy teoretycznej Doktorantki i dobrym przygotowaniu merytorycznym do realizacji swojej pracy doktorskiej. Tym niemniej, w mojej opinii, w tym wprowadzeniu do fizyki izolatorów topologicznych nadmierny akcent został położony na zagadnienia teoretyczne, które aczkolwiek fundamentalnie ważne, to jednak nie zostały bezpośrednio wykorzystane w stricte eksperymentalnej własnej pracy badawczej mgr Joanny Wincukiewicz. Relatywnie mało uwagi Doktorantka poświęciła tu zagadnieniom stanowiących podwaliny dla warsztatu eksperymentatora badającego materiały topologiczne. Zabrakło mi tu też choćby bardzo krótkiego przeglądu rzeczywistych materiałów krystalicznych, w których realizowane są rozmaite formy nietrywialnej topologii pasm elektronowych.

Rozdział 2 jest ciekawą prezentacją danych literaturowych na temat układów Bi_2Te_3 z domieszkami Mn, z uwypukleniem zagadnień związanych z samoistnym tworzeniem się bloków MnBi_2Te_4 (oznaczanych w rozprawie jako SL). W szczególności omówiona została zależność charakteru dalekozasięgowego uporządkowania magnetycznego w tych materiałach od liczby warstw Bi_2Te_3 (oznaczanych jako QL) pomiędzy blokami SL, jak też uzależnienie wystąpienia cech nietrywialnej topologii w heterostrukturach $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$ od tego, czy górną warstwą w takim układzie jest blok SL, czy też QL. Zaakcentowano przy tym rozbieżności obserwacji eksperymentalnych i przewidywań teoretycznych, które stały się dla Doktorantki motywacją do zidentyfikowania jeszcze innych uwarunkowań dla własności magnetycznych tych materiałów niż opisane dotąd w literaturze, takich jak nieporządek strukturalny lub koncentracja swobodnych nośników ładunku.

Kolejny rozdział rozprawy stanowi prezentacja technik eksperymentalnych, które zostały zastosowane w pracy doktorskiej mgr Joanny Wincukiewicz. Bardzo niewiele miejsca poświęcono tu metodologii wzrostu kryształów Bi_2Te_3 domieszkowanych Mn, zapewne ze względu na to, że wszystkie próbki do badań Doktorantka otrzymała od współpracowników z innych instytucji, co jednoznacznie stwierdza w krótkim Rozdz. 3.1, ale też jeszcze przynajmniej dwukrotnie na kolejnych kartach rozprawy. Tym niemniej sądzę, że informacja o syntezie próbek mogłaby być pełniejsza, oraz mogłyby jej towarzyszyć fotografie krystalicznych próbek użytych do badań fizycznych, których charakterystyki przedstawiono w Tabeli 1. W odniesieniu do tej tabeli, zabrakło mi w niej składów nominalnych (wyjściowych) syntezy próbek oraz informacji jak dużym błędem eksperymentalnym obarczone są wartości procentowej zawartości atomów Mn. Takiej informacji nie znalazłem też w dalszej części rozprawy, podobnie jak sposobu wyznaczenia błędu w liczbie warstw QL (dlaczego dla próbek S2 i S4 jest on zerowy?!). W Tabeli 1 podano też wartości temperatury Curie poszczególnych próbek, bez specyfikacji niepewności w ich wyznaczeniu. Według opisu tabeli, wartości te pochodzą z pomiarów magnetycznych i magnetometrycznych i są niezwykle istotne

dla całej dyskusji własności poszczególnych próbek w powiązaniu z ich charakterystykami strukturalnymi, jednak nie udało mi się znaleźć w rozprawie informacji o sposobie ich wyznaczenia z danych pomiarowych.

Podobnie krótki jest opis technik eksperymentalnych, które posłużyły charakteryzacji strukturalnej próbek. Zgodnie z zawartą tu informacją, badania mikroskopowe zostały przeprowadzone przez współpracowników Doktorantki, należy jednak mieć nadzieję, że z Jej udziałem, bowiem znaczenie tych pomiarów dla przedmiotu rozprawy doktorskiej jest nie do przecenienia.

Zupełnie inaczej przedstawia się opis kątowno rozdzielczej spektroskopii fotoemisyjnej (ARPES). Ten przedstawia zarówno zasady fizyczne tej techniki pomiarowej, jak i sposób prowadzenia eksperymentów na synchrotronie SOLARIS. Można zatem wnioskować, że Doktorantka osobiście uczestniczyła w sesjach pomiarowych i samodzielnie przeprowadziła analizy wyników. Tym niemniej, sądzę że właściwym byłoby wymienienie w Rozdz. 3.3 osób, które pomagały Jej w eksperymentach. W trakcie publicznej obrony pracy doktorskiej poproszę zatem Doktorantkę o doprecyzowanie, jaki był Jej udział w pomiarach ARPES oraz w analizie wyników.

Na kolejnych kilku stronach rozprawy przedstawiona jest technika naświetlania próbek wysokoenergetyczną wiązką elektronów, jako sposób kontrolowanej zmiany położenia poziomu Fermiego w izolatorach. Eksperymenty zostały wykonane we Francji przez współpracownika Doktorantki, a w rozprawie nie został zadeklarowany Jej bezpośredni udział w tych badaniach. Tym niemniej, opis techniki jest rzeczowy i wyczerpujący. Wspomniane są tu również pomiary oporu próbek podczas naświetlania, jednak nie została wymieniona zastosowana technika pomiarowa, ani żadne szczegóły dotyczące tych pomiarów. W mojej opinii, skoro ich wyniki zostały włączone do rozprawy doktorskiej mgr Joanny Wincukiewicz, na prawach równych z innymi pracami eksperymentalnymi, w tym również tymi, których Doktorantka osobiście nie wykonała (według informacji podanych w rozprawie), zasadnym byłoby choćby krótkie zaprezentowanie metodologii tych pomiarów, które nie tylko dostarczyły wartości temperatur przejść fazowych w badanych próbkach, ale przede wszystkim stanowią podstawę dla całej dyskusji przedstawionej w Rozdz. 7 rozprawy.

Przegląd technik eksperymentalnych wykorzystanych w pracy doktorskiej mgr Joanny Wincukiewicz kończy opis spektroskopii rezonansu ferromagnetycznego (FMR). Treść tej prezentacji wskazuje na dobrą znajomość tej techniki przez Doktorantkę, a choć nie jest to jednoznacznie stwierdzone w rozprawie można chyba bezpiecznie przyjąć, iż był to podstawowy obszar Jej osobistego zaangażowania w badania układów $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$. W opisie zabrakło mi jedynie specyfikacji zakresów temperatur i pól magnetycznych, w których prowadzone były pomiary, jak też informacji o orientacji próbek. Niektóre z tych danych odszukać jednak można na dalszych kartach rozprawy (np. na str. 65).

Rozdział 4, otwierający tę część rozprawy, która przedstawia wyniki naukowe otrzymane przez mgr Joannę Wincukiewicz w ramach Jej pracy doktorskiej, poświęcony jest omówieniu zagadnienia nieporządku strukturalnego w kryształach $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$, uwidocznionego w pomiarach mikroskopowych. Zamieszczone tu wyniki eksperymentalne wyraźnie wskazują na dwa rodzaje nieporządku w próbkach S1-S4: ten związany z rozkładem bloków SL i QL w próbce, jak i ten wynikający z obecności atomów Mn w warstwach QL oraz możliwego deficytu atomów Mn w warstwach SL. Zastanawia mnie na ile dany typ nieporządku i jego natężenie są powtarzalne w próbkach otrzymywanych w ten sam sposób (ta sama nominalna zawartość Mn, ta sama konfiguracja pieca, ten sam profil temperaturowy, ten sam program zmian

temperatury, etc.). W tym kontekście warto zauważyć w oparciu o Tabelę 1 oraz informacje podane w Rozdz. 4.1, że o ile próbki S1, S2 i S3 były otrzymywane inaczej, co może wyjaśniać inną budowę otrzymanych struktur $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$, to nie jest jasne, co spowodowało różnice pomiędzy próbkami S3 i S4. Innymi słowy, czy można wskazać na korelację pomiędzy technologią otrzymywania próbek, a dystrybucją atomów Mn w kryształach Bi_2Te_3 ? Ponadto, zasadne wydaje się pytanie, czy na podstawie przeprowadzonych przez Doktorantkę badań tylko czterech próbek, otrzymywanych w różny sposób, rzeczywiście możliwe jest powiązanie charakteru uporządkowania magnetycznego, a nawet wartości temperatury Curie z konkretnym rozkładem atomów Mn w warstwach SL i QL. Jeszcze większą trudność w udzieleniu odpowiedzi na te pytania zdają się sprawiać wyniki uzyskane na próbkach S5 i S6. W tym przypadku, kryształy różnią się nie tylko innym sposobem syntezy, ale też składem nominalnym matrycy (Bi_2Te_3 i BiSbTe_3).

Najważniejszą częścią rozprawy jest w mojej opinii Rozdz. 5.1, w którym przedstawione są wyniki pomiarów FMR próbek $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$. Podoba mi się sposób prezentacji i dyskusji danych eksperymentalnych, jak też bogactwo wniosków, jakie Doktorantka wyciągnęła z przeprowadzonych przez siebie badań. Podzielam Jej opinię, że wyniki pomiarów FMR bardzo wyraźnie wykazały, jak bardzo złożone są uwarunkowania dla magnetyzmu zbadanych próbek, a zatem proste próby ścisłego powiązania obserwowanych zachowań jedynie z odległością pomiędzy blokami SL (co sugerowano dotychczas w literaturze) są wysoce nieadekwatne. Do prawidłowego opisu układów $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$, oprócz znajomości liczby n , z całą pewnością równie ważna jest szczegółowa wiedza na temat dystrybucji atomów Mn w warstwach QL, jak też defektów w warstwach SL w postaci niedoboru atomów Mn. Zapewne dodatkową komplikacją jest statystyczny rozrzut wszystkich tych parametrów w objętościowych próbkach, tj. ich niejednorodność strukturalna.

Choć generalnie zgadzam się z wnioskowaniem przedstawionym w tym rozdziale, to jednak nie do końca jasne są dla mnie następujące problemy:

- (i) Dlaczego w próbkach S1, S3 i S4 nie uwidocznił się efekt obecności atomów Mn w warstwach QL. Chyba trudno przyjąć, że ich tam nie ma?
- (ii) Dlaczego w próbce S4, gdzie separacja bloków SL to tylko dwie warstwy QL, nie obserwuje się sprzężenia międzywarstwowego, które tak dobrze widać w próbce S2, gdzie $n = 4$.
- (iii) Zastanawia mnie zasadność założenia przyjętego na str. 70 dotyczącego jednakowych stałych anizotropii magnetycznej dla warstwy MnBi_2Te_4 i domieszkowanej Mn warstwy Bi_2Te_3 . Czy nie jest to nadmierne uproszczenie (choć może konieczne dla obliczenia stałej sprzężenia wymiennego J)?
- (iv) Intrygująca jest też oszacowana dla tych układów wartość sprzężenia J dla próbki S2, która jest dwa a nawet pięć rzędów wielkości mniejsza od wartości wyznaczonych dla metali d -elektronowych. Czemu przypisać tę różnicę? Czy Doktorantka policzyła wartości J dla pozostałych badanych przez Nią próbek?
- (v) Mam też pewne wątpliwości, co do poprawności sposobu wyznaczenia pól anizotropii na bazie wyników pokazanych na Rys. 5.5. Jak poradzić sobie z faktem, że dla próbki S1 wartości pól anizotropii są tak bardzo różne dla kątów bliskich $\theta_H = 90^\circ$ i $\theta_H = 0^\circ$? Z kolei, dla próbek S3 i S4 żadna z symulacji nie odtwarza dobrze wyników eksperymentalnych w okolicach kątów $\theta_H = -90^\circ$ i $\theta_H = 90^\circ$, a w pobliżu kąta $\theta_H = 0^\circ$ brakuje danych? Jakże zatem wartości $H_{\text{res}}(0)$ podstawiono do wzoru 5.4?

- (vi) Mam też dwie uwagi techniczne dotyczące ilustracji w Rozdz. 5.1: (i) Rys. 5.2 (c) zawiera wstawkę, która nie jest opisana w podpisie pod rysunkiem, ani w tekście rozprawy; (ii) Rys. 5.5 zyskałby na konsystencji, gdyby dla próbki S2 przedstawiono dane H_{res} w analogicznym zakresie kątów θ_H , jak dla pozostałych próbek, tym bardziej, że dane zaprezentowane w panelu (b) tego rysunku są powieleniem Rys. 5.2 (b).

Rozdział 5.2 przedstawia wyniki pomiarów FMR próbek S1, S5 i S6 naświetlanych różnymi dawkami wysokoenergetycznych elektronów. Zagadnienie, jakie miało zostać rozstrzygnięte w tych badaniach jest zasadniczo różne od problemu postawionego wcześniej w kontekście próbek S1-S4. Tym razem chodziło nie o powiązanie nieporządku strukturalnego (dystrybucji atomów Mn w kryształach Bi_2Te_3) z własnościami magnetycznymi, ale o stwierdzenie, czy zmiana koncentracji nośników ładunku, wywołana procesem tworzenia się defektów Frenkla i ich stopniową anihilacją w procesie wygrzewania próbek, ma wpływ na ich temperaturę Curie. Warto tu zwrócić uwagę, że próbkę S5 charakteryzowała nieregularna obecność zgrupowań warstw SL, a w próbce S6 wykazano jedynie nieliczne i nieregularnie występujące bloki SL (za Tabelą 1). Wyniki przeprowadzonych badań, wykazały dla wszystkich próbek, niezależnie od ich struktury krystalicznej, brak wpływu położenia poziomu Fermiego na ich własności magnetyczne. Wniosek jaki Doktorantka słusznie wysnuła z tej obserwacji to to, iż swobodne nośniki ładunku w kryształach Bi_2Te_3 (oraz BiSbTe_3) domieszkowanych atomami Mn nie uczestniczą w oddziaływaniach wymiennych, odpowiedzialnych za dalekozasięgowy porządek magnetyczny w tych materiałach.

W Rozdziale 6 swojej rozprawy doktorskiej mgr Joanna Wincukiewicz przedstawiła wyniki pomiarów ARPES próbek S1-S3, S5 i S6, skonfrontowane z obliczeniami z pierwszych zasad (DFT) struktur elektronowych powierzchni układów $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$ wykonanych przy założeniu różnych konfiguracji warstw SL i QL w próbce. Prace teoretyczne zostały wykonane przez zagranicznego współpracownika Doktorantki, co może tłumaczyć pominięcie w rozprawie szczegółów na temat obliczeń DFT (czytelnik jest kierowany do właściwej publikacji). Dla wszystkich zbadanych próbek (oprócz S6 z przewodnictwem typu p), widma ARPES pokazały obecność stanu Diraca ulokowanego ok. 350 meV poniżej poziomu Fermiego. Problem braku przerwy energetycznej w punkcie Diraca został dogłębnie przeanalizowany na przykładzie próbki S3, dla której przeprowadzono dodatkowe pomiary ARPES przy różnych energiach fotonów i w różnych temperaturach. Przedstawiona w rozprawie dyskusja jest właściwie zaawansowana, a konkluzje przekonujące. Podstawowe wnioski to niemożność zidentyfikowania w widmach ARPES efektów uporządkowania magnetycznego oraz istotny wpływ nieporządku atomowego, a szczególnie deficytu Mn w blokach SL, na strukturę powierzchniowych stanów elektronowych oraz stopień ich delokalizacji.

Na kolejnych stronach rozprawy (Rozdz. 7), omówione są wyniki badań ukierunkowanych na określenie mechanizmów prowadzących do wystąpienia anomalnego efektu Halla (AHE) w charakterystykach magnetotransportowych kryształów Bi_2Te_3 i BiSbTe_3 domieszkowanych atomami Mn (próbki S5 i S6), w których warstwy SL występują nieregularnie w postaci bloków bądź pojedynczo. Wykonane naświetlania próbek S5 i S6 wiązką wysokoenergetycznych elektronów wykazały możliwość kontrolowanej zmiany położenia poziomu Fermiego, z towarzyszącą temu procesowi zmianą AHE. Najważniejszy wniosek z przeprowadzonych analiz to przypisanie AHE do mechanizmu związanego z krzywizną Berry'ego. Lektura tego rozdziału nasuwa następujące pytania/uwagi:

- (i) Jak należy zrozumieć informację podaną na str. 100, że początkowa koncentracja dziur w S6 „wahała się od 5.8×10^{20} do $9.7 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ”? Jak w tym kontekście ma

się stwierdzenie, że koncentracja dziur *zmałała* po naświetleniu dawką 1 C/cm^2 do wartości $6.2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, a wielkość redukcji ma świadczyć o dwukanałowym przewodnictwie w tym materiale?

- (ii) Dlaczego próbka S5 nie wykazuje AHE przed naświetlaniem?
- (iii) Na str. 101 mowa jest (wiersze 4 od góry i 12 od dołu) o histerezach namagnesowania w próbce S5, widocznych rzekomo na Rys. 7.3 (b), gdzie trudno dopatrzeć się takiego efektu.
- (iv) Na str. 102 diskutowana jest anomalna oporność Halla $\rho_{\text{sat}}^{\text{AHE}}$, ale sposób jej wyznaczania opisany jest dopiero na str. 106 i zilustrowany na Rys. 7.4 (c).
- (v) Zależność $\rho_{\text{sat}}^{\text{AHE}}(T)$ wyznaczona dla próbki pierwotnej S5 i naświetlonej dawką 3.26 C/cm^2 opisana została funkcją $(1-T/T_C)^n$. Na ile wiarygodny jest to opis dla próbek naświetlonych innymi dawkami, a w szczególności dla dawki 1.36 C/cm^2 , dla której Rys. 7.3 (c) przedstawia tylko dwa punkty? Podobne pytanie należy zadać w odniesieniu do danych pokazanych na Rys. 7.4 (b), które dotyczą próbki S6 (tylko jedno dopasowanie, wykonane dla pośredniej dawki). Z tymi spostrzeżeniami mocno kontrastuje stanowcze stwierdzenie „Wszystkie krzywe, odpowiadające różnym położeniom poziomu Fermiego, wskazują na tę samą wartość $T_C \sim 16 \text{ K}$ ”, które znalazło się w podpisie do tego rysunku.
- (vi) W jaki sposób została wyznaczona ruchliwość nośników ładunku w próbkach S5 i S6, która została pokazana na Rys. 7.5?
- (vii) Podany na str. 106 (pod wyrażeniem 7.3) sposób obliczania przewodności Halla jest poprawny tylko w przypadku $\rho_{xx} \gg \rho_{xy}$. Dokonane uproszczenie nie zostało należycie uzasadnione.
- (viii) Opis zawartości Rys. 7.8 na str. 108 (wiersz 10 od dołu) przywołuje skalowanie Köhlera bez należytego wyjaśnienia sposobu dokonanych obliczeń.
- (ix) Co było podstawą dla stwierdzenia, że w próbce S5 z koncentracją dziur równą $1.8 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ energia poziomu Fermiego wynosi 25 meV ?
- (x) Rys. 7.6 pokazuje wyniki uzyskane dla próbki pierwotnej S6 i dla próbki naświetlonej dawką 4.57 C/cm^2 . Czy na podstawie tylko tych dwóch danych można wysnuć ogólny wniosek, że anomalny efekt Halla w kryształach BiSbTe_3 domieszkowanych Mn wynika z krzywizny Berry’ego (str. 109)? Warto tu zauważyć, że $\rho_{\text{sat}}^{\text{AHE}}$ w tych próbkach nie jest monotoniczną funkcją dawki naświetlania.

Zbiorne podsumowanie wyników uzyskanych w ramach pracy badawczej mgr Joanny Wincukiewicz znajduje się w Rozdziale 8. Ma ono formę przytoczenia wniosków końcowych z prac ukierunkowanych na określenie wpływu nieporządku strukturalnego na własności magnetyczne i powierzchniowe struktury pasmowe heterostruktur $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/(\text{Bi}_2\text{Te}_3)_n$, jak też na zbadanie wpływu koncentracji swobodnych nośników ładunku na magnetyzm i charakterystyki magnetotransportowe kryształów Bi_2Te_3 i BiSbTe_3 domieszkowanych atomami manganu. W mojej opinii, ten syntetyczny przegląd wyników jest dobrze opracowany, aczkolwiek zyskałby na silniejszym zaakcentowaniu przyszłych kierunków eksperymentalnych i teoretycznych badań tych materiałów (dość słabo zarysowane sugestie można odnaleźć na str. 113), a w szczególności osobistych planów naukowych Doktorantki w obrębie tej tematyki badawczej.

Rozprawę zamyka informacja bibliograficzna o czterech publikacjach stanowiących podstawę rozprawy doktorskiej mgr Joanny Wincukiewicz, wykaz 38 ilustracji i 2 tabel w niej zamieszczonych, oraz lista cytowanej literatury, obejmująca aż 201 pozycji. Wymienione na str. 114 artykuły stanowią jak dotąd całkowity dorobek publikacyjny Doktorantki. Trzy z nich są indeksowane w bazie *Web of Science* (Clarivate). Historycznie pierwsza publikacja, której mgr Joanna Wincukiewicz została współautorem ukazała się w wybitnie prestiżowym *Nature Physics*. W pracy tej Doktorantka jest 6 autorem na liście 14 firmujących ją członków międzynarodowego zespołu (autorem korespondencyjnym była prof. Lia Krusin-Elbaum z The City College of New York - CUNY), a Jej rola polegała na współudziale w wykonaniu pomiarów FMR i nie obejmowała innych działań, w tym prac interpretacyjnych i redakcyjnych (wg informacji podanych w artykule). Publikacja ta została znakomicie zauważona przez inne grupy badawcze; na dzień 5.02.24 zdobyła już 85 cytowań. Kolejnym osiągnięciem w karierze Doktorantki była publikacja w *2D Materials*, gdzie występuje jako pierwszy autor w gronie 20 autorów z 9 instytucji naukowych z kraju i zagranicy (autorem korespondencyjnym była prof. Agnieszka Wołoś). Również ta praca zdążyła już zwrócić uwagę środowiska (12 cytowań w ciągu dwóch ostatnich lat). Najnowszą publikacją mgr Joanny Wincukiewicz jest artykuł w *Physical Review B*, gdzie znów jest pierwszym autorem w zespole 8 współpracowników, tym razem nieomal wyłącznie z Polski (prof. Wołoś pełniła rolę autora korespondującego). Czwarta publikacja Doktorantki, nie ujęta w bazie *Web of Science*, ukazała się w materiałach konferencyjnych *Proc. SPIE Optics + Optoelectronics Prague 2023* i zapewne jest owocem wykładu, jaki na tej konferencji wygłosiła Promotorka doktoratu mgr Joanna Wincukiewicz. Również tutaj Doktorantka jest pierwszym autorem (w gronie łącznie 15 współautorów z Polski), co zapewne odzwierciedla Jej istotną rolę w przedstawionych w nich badaniach naukowych, tak jak w dwóch wcześniejszych artykułach.

Jak podkreśliłem to już wcześniej, rozprawa doktorska mgr Joanny Wincukiewicz jest napisana starannie i klarownie. Z obowiązku recenzenta powinienem jednak wspomnieć o kilku zauważonych niedociągnięciach redakcyjnych. Należą do nich „literówki” i inne proste błędy edytorskie:

- str. 3 wiersz 9: brak „m” w słowie „magnetycznym”
- str. 10 wiersze 2, 4, 5 i 7: „MIT” zamiast „MTI”; ten sam błąd powielony jest na str. 96, 100, 101, 104
- str. 20 wiersz 1: brak „i in.” po „Di Xiao”
- str. 26 wiersz 6 od dołu: praca [47] nie jest autorstwa Thoulessa, Kohmoto, Nightingale’a i den Nijsa, a jedynie ostatniego z tych autorów. Prawdopodobnie Doktorantka miała zamiar przywołać fundamentalną publikację tych autorów w *Phys. Rev. Lett.* 49 (1982) 405.
- str. 31 wiersz 18: powinno być „twierdzenia”
- str. 33 wiersz 19: powinno być „bezdysypacyjne”
- str. 35 wiersz 2 podpisu pod Rys. 1.6: powinno być „diracowska” (o ile zgodzimy się na pewien żargon w określeniu „dyspersja diracowska”)
- str. 41 wiersz 4 od dołu: powinno być „badanych”
- str. 48: w lewym panelu Rys. 2.2 (b) zabrakło informacji o wartości pola magnetycznego w którym przeprowadzono pomiar (nie ma jej też w podpisie pod rysunkiem)

- str. 48: w prawym panelu Rys. 2.2 (b) przedstawiono wyniki zaczerpnięte z pracy [29], które nie zostały opisane w tekście. Rysunek ten nie posiada opisu osi odciętych [powinno być to $\mu_0 H$ (mT)], a oś rzędnych w jego dolnej części ma zupełnie błędny opis wielkości tam pokazanej [powinno być ΔG_{xx}^{AHE}]
- str. 48 wiersz 4 od dołu: powinno być „ G_{xy}^{AHE} ”
- str. 51 wiersz 6 od dołu: powinno być „unikatowych”
- str. 52 wiersz 15: chyba powinno być „naparowane”
- str. 53 wiersz 1: powinno być „niesprężystemu”
- str. 57 wiersz 3 od dołu w podpisie Rys. 3.2: powinno być „został”
- str. 63 wiersz 12 od dołu: powinno być „koncentrację”
- str. 65 wiersz 5 od dołu: powinno być „obecności”
- str. 88 wiersz 10 od dołu: pomiary próbki S5 i S6 zostały wykonane w innych temperaturach, a mianowicie odpowiednio 6.5 K i 8 K (wg. Rys. 6.3)
- str. 98 Tabela 2 czwarty wiersz od dołu oraz str. 100 wiersz 7: koncentracja dziur w próbce S6 dla dawki 2 C/cm² podana jest jako $p = 3.4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$; czy nie powinno to być $4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, na co wskazuje Rys. 7.2 (c)?
- str. 99 wiersz 1 od dołu: powinno być „nasycenia”.

W tekście rozprawy dostrzegłem też kilka mało precyzyjnych lub błędnych sformułowań. Przykładami są tu:

- str. 41 wiersz 8: temperatura Curie nie „oscyluje” w podanym przedziale, a mieści się w nim
- str. 41 wiersz 9: obserwacja QAHE nie jest zapewne „wynikiem defektów”, a wskazuje na ich obecność, lub efekt QAHE jest skutkiem występowaniem defektów
- str. 53 wiersz 3: czym jest „nieelastyczna średnia droga swobodna elektronów”?
- str. 62 wiersz 11: zawartość Mn nie „oscyluje” w podanym zakresie, a mieści się w nim
- str. 105 wiersz 10 od dołu: to nie „ruchliwość analizowanych próbek” jest analizowana tylko nośników ładunku w tych próbkach
- str. 105 wiersz 4 od dołu: radykalnej korekty wymagałoby zdanie „Ta obserwacja jest unikalną cechą prezentowanego tutaj eksperymentalnego podejścia (...)”
- str. 108 wiersz 11: zdanie mówiące o zależności σ_{xy}^{AHE} od położenia poziomu Fermiego jest nadmiernie złożone, co utrudnia zrozumienie przekazywanej myśli, a przywołany Rys. 7.7 wydaje się nie być jej właściwą ilustracją
- str. 112 wiersz 17: to nie „zastosowanie prawa potęgowego” sugeruje określone mechanizmy sprzężenia magnetycznego, lecz spełnienie tego prawa wskazuje na nie

Przegląd moich komentarzy natury technicznej chcę zakończyć uwagą, że wykaz akronimów i oznaczeń umieszczony na początku rozprawy (wbrew tytułowi rozdziału, są tam nie tylko akronimy, ale też oznaczenia wielkości fizycznych) zyskałby na alfabetycznym uporządkowaniu pozycji. Nie jest dla mnie jasne, dlaczego znalazły się w nim wyjaśnienia oznaczeń pewnych wielkości fizycznych (nawet tak oczywiste, jak np. E_F lub T_C), a innych, omawianych w rozprawie, a mniej powszechnych (choćby σ_{xy}^{AHE}) w nim brak. Wyrażę też w tym miejscu wątpliwość, co do poprawności używania w całej rozprawie określeń „warstwa

septetowa" i „warstwa kwintetowa”, w charakterze tłumaczeń angielskich określeń *septuple layer* oraz *quintuple layer*. Moim zdaniem, lepszymi określeniami byłyby to odpowiednio „warstwy siedmiokrotne” i „warstwy pięciokrotne”, w znaczeniu bloków złożonych z siedmiu i pięciu kolejnych płaszczyzn atomowych. Pojęcia „septet” i „kwintet” pozostawiłbym np. na zwyczajowe oznaczenie odpowiednio zdegenerowanych poziomów energetycznych. Respektuję jednak konwencję przyjętą przez Autorkę rozprawy. Zwrócił też moją uwagę akronim EDX, który w wykazie skrótów przedstawiony jest jako „spektrometr rentgenowski z dyspersją energii”, co jest oczywiście poprawne, ale kontrastuje z innymi akronimami tego typu (SEM, SIMS, ARPES, FMR, i in.) w tym samym wykazie, które każdorazowo określają technikę eksperymentalną, a nie przyrząd lub aparaturę badawczą.

~~~~~ O ~~~~~

W podsumowaniu merytorycznych aspektów oceny rozprawy doktorskiej mgr Joanny Wincukiewicz pragnę podkreślić, iż w mojej opinii zawiera ona **wiele ciekawych i ważnych wyników naukowych, które niewątpliwie znajdą swoje trwałe miejsce w literaturze przedmiotu**. Przede wszystkim, praca to uwydatniła potrzebę prawdziwie dogłębnego zrozumienia procesu domieszkowania atomami Mn kryształów  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ , który prowadzić może do powstawania w sposób samorganizowany bloków  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$  oddzielonych od bloków  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  przerwami van der Waalsa. Niewątpliwym sukcesem Doktorantki jest wykazanie, że właściwości magnetyczne układów  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/\text{Bi}_2\text{Te}_3$  zależne są nie tylko od odległości pomiędzy blokami  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4$ , jak sugerowano dotąd w literaturze, ale też od możliwego do wystąpienia deficytu atomów Mn w tych blokach oraz możliwej obecności atomów Mn w warstwach  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ . Ważnym rezultatem przeprowadzonych prac jest też stwierdzenie, że zmiany w koncentracji swobodnych nośników ładunku nie wpływają na siłę oddziaływań wymiennych odpowiedzialnych za charakterystyki magnetyczne zbadanych materiałów. Równie istotne jest pokazanie, że zaobserwowany dla wybranych próbek anomalny efekt Halla ma swoje pochodzenie w krzywiźnie fazy Berry’ego, tj. warunkowany jest nietrywialną topologią pasm elektronowych w tych układach.

Przy ocenie merytorycznej wartości pracy doktorskiej mgr Joanny Wincukiewicz należy koniecznie zauważyć, **jak bardzo aktualne, zaawansowane i niełatwe w praktycznej realizacji były zadania badawcze przed nią postawione oraz jak szeroki i nowoczesny był warsztat badawczy służący ich realizacji**. Niewątpliwym sukcesem przeprowadzonych badań świadczy o odwadze w podejmowaniu poważnych wyzwań naukowych, pokaźnej wiedzy oraz dużej sprawności eksperymentalnej i analitycznej Doktorantki.

Można oczekiwać, że **bogaty materiał doświadczalny i interpretacyjny**, zawarty w pracy doktorskiej mgr Joanny Wincukiewicz, stanowić będzie **ważny punkt odniesienia w dalszych badaniach magnetycznych izolatorów topologicznych** opartych o kryształy  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  domieszkowane Mn, w tym heterostrukтуры  $\text{MnBi}_2\text{Te}_4/\text{Bi}_2\text{Te}_3$ . Co więcej, szereg spostrzeżeń Doktorantki dotyczących wpływu nieporządku atomów magnetycznych na własności magnetotransportowe badanych układów ma zapewne **ogólniejszy charakter**, a zatem tym większe jest ich **znaczenie dla rozwijanej intensywnie fizyki magnetycznych materiałów topologicznych**.

### Opinia końcowa

Stwierdzam, iż przedstawiona mi do oceny rozprawa doktorska autorstwa Pani mgr Joanny Wincukiewicz zawiera oryginalne rozwiązanie problemu naukowego, wykazując przy tym szeroką wiedzę Doktorantki w przedmiotowym zakresie badań i umiejętność

**prowadzenia pracy badawczej. Tym samym spełnione są wymagania stawiane osobom ubiegającym się o nadanie stopnia doktora w naszym Kraju, określone w art. 187 ustawy z dnia 20 lipca 2018 r. – Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce (Dz.U. z 2022 r. poz. 574 z późn. zm.). Na tej podstawie, wnoszę do Rady Naukowej Dyscypliny Nauki Fizyczne Uniwersytetu Warszawskiego o dopuszczenie mgr Joanny Wincukiewicz do dalszych etapów postępowania w sprawie nadania Jej stopnia naukowego doktora, w tym do publicznej obrony rozprawy doktorskiej.**

Wrocław, 7 lutego 2024 r.

Dariusz Wincukiewicz