

Prof. dr hab. Krzysztof Byczuk

Instytut Fizyki Teoretycznej
Wydział Fizyki
Uniwersytet Warszawski
Pasteura 5
02-093 Warszawa

Report on Doctoral Dissertation of Anand Manaparambil

The doctoral dissertation of Mr. Anand Manaparambil was written in the Institute of Spintronics and Quantum Information at the Faculty of Physics and Astronomy, Adam Mickiewicz University, Poznań, Poland. The title is “Nonequilibrium transport and Kondo correlations in nanoscale systems” and was prepared under the supervision of prof. dr hab. Ireneusz Weymann. The thesis is written in English, contains 155 pages split on 9 chapters and 2 appendices. The text is organized into an introduction with 6 chapters and bibliography and then there are 6 research papers reprinted. The dissertation is based on those 6 articles, 5 of them published in peer review journals and one, as I understand, submitted to publication in Sept. 2024. Mr. Manaparambil is the first author in all of those articles, 4 of them are published together with prof. Weymann and 2 of them are in collaboration of 4 authors, apart of the supervisor, there are also Andreas Weichselbaum and Jan von Delft. In the appendix B the statements concerning the other authors’ contributions are printed.

In the chapter 1 the aims and motivations for this thesis are presented. The main theme of studying is the understanding the electronic, thermoelectric and heat transport properties through nanoscale structures when correlation effects are present due to the Kondo phenomenon. The main objectives are enumerated as: 1. Adaptation and development of numerical techniques to describe the transport through Kondo-correlated systems far from equilibrium settings, 2. Investigation of the electronic, thermoelectric and spin-caloritronic signatures of the Kondo effect beyond the linear response regime, 3. Providing quantitatively reliable theoretical predictions in the nonequilibrium regime to aid experimental exploration of Kondo systems. These objectives were achieved as is documented in the reprinted 6 articles, attaching this dissertation.

The chapters 2-5 contain the basic introduction to the physics and the methods used by Mr. Manaparambil in studying Kondo correlations in nanoscale systems in the nonequilibrium regimes. The chapter 6 contains the Polish translation of the summary. I find this as a good idea to supplement the research articles by pedagogic like introduction. I would only advice to add some intuition beyond the quantity named “the figure of merit”. I am also confused with the text description and the plot 4.1. It is not clear where the linear and where the logarithmically discretized energy levels are. This introduction section ends with a long bibliography of 100 cited articles, which again I find very useful for the beginning reader.

In the part II there are reprinted 6 articles constituting the dissertation. Though I am rather used to standard like dissertation, this type of presenting the results of the PhD candidate is a signature of the present time. The first article, published in Scientific report and with the title “Spin Seebeck effect of correlated magnetic molecules” documents the investigation of the spin-resolved thermoelectric properties of strongly correlated junctions in the linear response regime. The magnetic molecule was modeled by a single level quantum system coupled to the spin system (core of the molecule) via the exchange effective interaction. The spin Seebeck effect, heat conductance and the figure of merit were computed within the numerical renormalization group method. It is shown that the thermopower effect strongly depend on the exchange interaction and the anisotropy of the molecule. In case of the ferromagnetic lead coupled to the molecule the thermoelectric effect shows an interplay between the spin-resolved tunneling processes and the intrinsic magnetic properties of the molecule. The spin Seebeck effect is determined and discussed. The Kondo correlation was treated numerically within the numerical renormalization group.

The second paper of this dissertation was published in the Physical Review B and is titled “Nonequilibrium spintronic transport through Kondo impurities”. The paper studied the nonequilibrium transport through a quantum impurity, described by the single impurity Anderson model in the presence of the ferromagnetic leads. The single impurity Anderson model is a paradigm for studying Kondo correlations in many-body systems. The problem was approached and solved by a hybrid numerical renormalization group and time dependent density matrix renormalization group thermofield quenched approach. The differential conductance was determined as a function of the bias voltage. It showed a zero-bias peak, a characteristics of the Kondo correlations in the system in the equilibrium case. Now, in the non-equilibrium regime this resonance in the differential conductance also decreases as the spin polarization of the leads increases. The temperature dependence of the non-equilibrium conductance was also studied.

In the third paper “Nonequilibrium steady-state thermoelectrics of Kondo-correlated quantum dots”, submitted on Arxiv, the transport through a quantum dot, described by the single impurity Anderson model, is studied in the case when two leads possess different temperatures and chemical potentials. The same method as before, i.e. the hybrid numerical renormalization group and time dependent density matrix renormalization group approach, is used to solve this non-equilibrium problem. The finite peak of the conductance was found at the finite temperature difference between the leads. It is found that the transport properties seem to be similar to those obtained in the linear response regime, however the effective temperature is different and depends on the actual lead’s temperatures. The change of the Seebeck coefficient is found, signaling the presence of the Kondo correlations. In addition the heat current and the heat conductance was determined as a function of the temperature difference between the leads.

The next, fourth paper, “Nonequilibrium Seebeck effect and thermoelectric efficiency of Kondo-correlated molecular junction” published in the Physical Review B, is again devoted to studying transport properties in the non-equilibrium regime through the quantum dot with Kondo correlation in the asymmetric case. The thermal and bias asymmetries were treated perturbatively. The coupling of the dot to the leads was strong and the single impurity problem was solved by numerical renormalization group, numerically exact method. In the Coulomb blockade regime the sign change in the transport characteristics was observed, confirming the presence of the Kondo like correlations

even in the non-equilibrium conditions. Studying the heat current and thermoelectric efficiency showed that the system can work as a heat engine with a reasonable efficiency.

The fifth paper, "Spin-resolved nonequilibrium thermopower of asymmetric nanojunction" published in the Physical Review B, seems to be a continuation of the former studies of the single impurity Anderson model in the non-equilibrium regime, supposing to describe quantum dots coupled to asymmetric leads. The asymmetry is again treated perturbatively. The coupling of one lead is weak and perturbative but the other is strong and treated by the numerical renormalization group procedure. The differential and non-equilibrium Seebeck effect in different magnetic configurations of the leads were analyzed. It turns out that the spin-dependent tunneling plays a crucial role in the device performance. The spin accumulation is identified as a source on the specific behavior of the spin Seebeck effect.

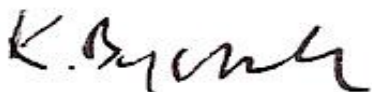
In the last paper, "Giant tunnel magnetoresistance induced by the thermal bias" published in the Journal of magnetism and magnetic materials, the research on the single impurity Anderson model as a model of quantum dots with asymmetric couplings and thermal conditions is continued. The spin-resolved transport study shows that a giant tunnel magnetoresistance effect can be reached by properly tuning the gate and the bias voltages. This is an effect due to the interplay between the Kondo effect and the exchange field induced by the coupling to the ferromagnetic lead.

The Appendix A contains the scientific achievements of Mr. Manaparambil and the Appendix B reprints the statements of the authors about their contributions to the joint articles.

The reviewed dissertation presents a comprehensive study of the electric, heat and electrothermal transport properties of model systems with strong correlation, the Kondo effect, in the non-equilibrium regime of different parameters. Various transport properties were discussed in the wide range of parameters controlling the system. Possible connections to experimental setups are described. The dissertation is based on 6 articles, 5 of them already published in peer reviewed journals. I conclude that this fact also confirms the validity and correctness of the research presented here.

It is not clear for me in details how much Mr. Manaparambil contributed in developing the original computer programs or it only added some subroutines to adopt existing codes for the specific calculations.

Nevertheless, I am sure that the dissertation presents the highest standards and I recommend to continue the doctoral procedure. I strongly believe that Mr. Manaparambil will defend this thesis and will be honored a doctorate title.



Krzysztof Byczuk

Recenzja pracy doktorskiej pana Ananda Manaparambila – tłumaczenie

Rozprawa doktorska pana Ananda Manaparambila została napisana w Instytucie Spintroniki i Informatyki Kwantowej na Wydziale Fizyki i Astronomii Uniwersytetu im. Adama Mickiewicza w Poznaniu. Tytuł pracy to „Transport nierównowagowy i korelacje Kondo w układach nanoskalowych” i została przygotowana pod kierunkiem prof. dr hab. Ireneusza Weymanna. Praca jest napisana w języku angielskim, zawiera 155 stron podzielonych na 9 rozdziałów i 2 załączniki. Tekst jest zorganizowany na wstęp i 6 rozdziałów i bibliografię, a następnie przedrukowano 6 artykułów naukowych. Rozprawa doktorska opiera się na tych 6 artykułach, z których 5 zostało opublikowanych w czasopiśmie recenzowanych, a jeden, jak rozumiem, został złożony do publikacji we wrześniu 2024 roku. Pan Manaparambil jest pierwszym autorem wszystkich tych artykułów, 4 z nich zostały opublikowane wspólnie z prof. Weymannem, a 2 z nich są we współpracy 4 autorów, oprócz promotora, są jeszcze Andreas Weichselbaum i Jan von Delft. W załączniku B wydrukowano oświadczenia dotyczące wkładu innych autorów.

W rozdziale 1 przedstawiono cele i motywacje niniejszej rozprawy. Głównym tematem badań jest zrozumienie właściwości elektronicznych, termoelektrycznych i transportu ciepła przez struktury w nanoskali, gdy występują efekty korelacji ze względu na zjawisko Kondo. Główne cele są następujące: 1. Adaptacja i rozwój technik numerycznych do opisu transportu przez układy skorelowane Kondo z dala od stanu równowagi, 2. Badanie elektronicznych, termoelektrycznych i spinowo-kalorytrycznych sygnatur efektu Kondo poza reżimem odpowiedzi liniowej, 3. Dostarczenie ilościowo wiarygodnych przewidywań teoretycznych w reżimie nierównowagowym w celu wsparcia eksperymentalnej eksploracji układów Kondo. Cele te zostały osiągnięte, co zostało udokumentowane w przedrukowanych 6 artykułach załączonych do niniejszej rozprawy.

Rozdziały 2-5 zawierają podstawowe wprowadzenie do fizyki i metod stosowanych przez pana Manaparambila w badaniu korelacji Kondo w układach nanoskalowych w reżimach nierównowagowych. Rozdział 6 zawiera polskie tłumaczenie streszczenia. Uważam, że jest to dobry pomysł na uzupełnienie artykułów naukowych o pedagogiczne wprowadzenie. Radziłbym tylko dodać trochę intuicji dla wielkości zwanej „liczbą zasług”. Jestem również zdezorientowany opisem tekstowym i wykresem 4.1. Nie jest jasne, gdzie znajdują się liniowe, a gdzie logarytmicznie zdyskretyzowane poziomy energii. Sekcja wprowadzająca kończy się długą bibliografią zawierającą 100 cytowanych artykułów, które ponownie uważam za bardzo przydatne dla początkującego czytelnika.

W części II przedrukowano 6 artykułów składających się na rozprawę doktorską. Choć jestem raczej przyzwyczajony do standardu, jakim jest rozprawa doktorska, to taki sposób prezentacji wyników pracy doktoranta jest charakterystyczny dla obecnych czasów. Pierwszy artykuł, opublikowany w Scientific report i zatytułowany „Spin Seebeck effect of correlated magnetic molecules” dokumentuje badania właściwości termoelektrycznych silnie skorelowanych złącz w reżimie odpowiedzi liniowej. Część cząsteczka magnetyczna została zamodelowana przez jednopoziomowy układ kwantowy sprzężony z układem spinowym (rdzeniem cząsteczki) poprzez efektywne oddziaływanie wymiany. Spinowy efekt Seebecka, przewodnictwo cieplne i liczba zalet zostały obliczone w ramach numerycznej metody grupy renormalizacji. Pokazano, że efekt termoenergetyczny silnie zależy od oddziaływania wymiennego i anizotropii cząsteczki. W przypadku ferromagnetycznego ołowiu sprzężonego z cząsteczką efekt

termoelektryczny wykazuje wzajemne oddziaływanie pomiędzy procesami tunelowania spinowego i wewnętrznymi właściwościami magnetycznymi cząsteczki. Wyznaczono i przedyskutowano spinowy efekt Seebecka. Korelacja Kondo została potraktowana numerycznie w ramach numerycznej grupy renormalizacyjnej.

Druga praca doktorska została opublikowana w Physical Review B i nosi tytuł „Nonequilibrium spintronic transport through Kondo impurities”. W pracy zbadano nierównowagowy transport przez kwantowe zanieczyszczenie, opisany przez model Andersona pojedynczego zanieczyszczenia w obecności ferromagnetycznych przewodników. Model pojedynczego zanieczyszczenia Andersona jest paradygmatem do badania korelacji Kondo w układach wielocieleśnych. Problem został rozwiązany za pomocą hybrydowej numerycznej grupy renormalizacji i zależnej od czasu grupy renormalizacji macierzy gęstości w podejściu termofield quenched. Przewodność różnicowa została wyznaczona jako funkcja napięcia polaryzacji. Wykazała ona zerowy pik polaryzacji, charakterystykę korelacji Kondo w układzie w przypadku równowagi. Teraz, w reżimie nierównowagowym, ten rezonans w przewodnictwie różnicowym również maleje wraz ze wzrostem polaryzacji spinowej przewodów. Zbadano również zależność przewodnictwa nierównowagowego od temperatury.

W trzeciej pracy „Nonequilibrium steady-state thermoelectrics of Kondo-correlated quantum dots”, opublikowanej na Arxiv, transport przez kropkę kwantową, opisany modelem pojedynczego zanieczyszczenia Andersona, jest badany w przypadku, gdy dwa wyprowadzenia mają różne temperatury i potencjały chemiczne. Do rozwiązania tego nierównowagowego problemu użyto tej samej metody, co poprzednio, tj. hybrydowej numerycznej grupy renormalizacji i zależnej od czasu grupy renormalizacji macierzy gęstości. Skończony pik przewodnictwa został znaleziony przy skończonej różnicy temperatur pomiędzy przewodami. Stwierdzono, że właściwości transportowe wydają się być podobne do tych uzyskanych w reżimie odpowiedzi liniowej, jednak efektywna temperatura jest inna i zależy od rzeczywistych temperatur ołowiu. Stwierdzono zmianę współczynnika Seebecka, sygnalizującą obecność korelacji Kondo. Ponadto prąd cieplny i przewodność cieplna zostały określone w funkcji różnicy temperatur między kontaktami.

Kolejna, czwarta praca, „Nonequilibrium Seebeck effect and thermoelectric efficiency of Kondo-correlated molecular junction”, opublikowana w Physical Review B, jest ponownie poświęcona badaniu właściwości transportowych w reżimie nierównowagowym przez kropkę kwantową z korelacją Kondo w przypadku asymetrycznym. Asymetrie termiczna i polaryzacyjna zostały potraktowane perturbacyjnie. Sprężenie kropki z przewodami było silne, a problem pojedynczego zanieczyszczenia został rozwiązany metodą numeryczną z grupą renormalizacji. W reżimie blokady Coulomba zaobserwowano zmianę znaku w charakterystyce transportu, potwierdzając obecność korelacji typu Kondo nawet w warunkach nierównowagowych. Badanie prądu cieplnego i wydajności termoelektrycznej wykazało, że układ może pracować jako silnik cieplny z rozsądną wydajnością.

Piąta praca, „Spin-resolved nonequilibrium thermopower of asymmetric nanojunction”, opublikowana w Physical Review B, wydaje się być kontynuacją wcześniejszych badań modelu pojedynczego zanieczyszczenia Andersona w reżimie nierównowagowym, zakładając opis kropek kwantowych sprzężonych z asymetrycznymi przewodami. Asymetria jest ponownie traktowana perturbacyjnie. Sprężenie jednego wyprowadzenia jest słabe i perturbacyjne, ale drugie jest silne i traktowane przez numeryczną procedurę grupy renormalizacji. Przeanalizowano różniczkowy i nierównowagowy efekt Seebecka w różnych konfiguracjach magnetycznych wyprowadzeń. Okazuje się, że tunelowanie

zależne od spinu odgrywa kluczową rolę w wydajności urządzenia. Akumulacja spinowa została zidentyfikowana jako źródło specyficznego zachowania spinowego efektu Seebecka.

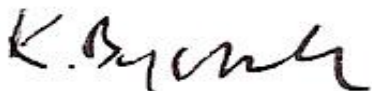
W ostatnim artykule, „Giant tunnel magnetoresistance induced by the thermal bias”, opublikowanym w Journal of magnetism and magnetic materials, kontynuowane są badania nad modelem Anderson z pojedynczym zanieczyszczeniem jako modelem kropek kwantowych z asymetrycznymi sprzężeniami i warunkami termicznymi. Badanie transportu z rozdzielczością spinową pokazuje, że gigantyczny efekt magnetooporu tunelowego można osiągnąć poprzez odpowiednie dostrojenie napięcia bramki i napięcia polaryzacji. Jest to efekt wynikający z interakcji między efektem Kondo a polem wymiany indukowanym przez sprzężenie z ferromagnetycznym kontaktem.

Dodatek A zawiera dorobek naukowy Pana Manaparambila, a Dodatek B przedrukowuje oświadczenia autorów o ich wkładzie we wspólne artykuły.

Recenzowana rozprawa doktorska przedstawia kompleksowe badania właściwości transportu elektrycznego, cieplnego i elektrotermicznego układów modelowych z silną korelacją, efektem Kondo, w reżimie nierównowagowym o różnych parametrach. Omówiono różne właściwości transportowe w szerokim zakresie parametrów kontrolujących układ. Opisano możliwe powiązania z układami eksperymentalnymi. Rozprawa opiera się na 6 artykułach, z których 5 zostało już opublikowanych w recenzowanych czasopismach. Stwierdzam, że fakt ten również potwierdza zasadność i poprawność przedstawionych tu badań.

Nie jest dla mnie jasne, w jakim stopniu pan Manaparambil przyczynił się do opracowania oryginalnych programów komputerowych, czy też jedynie dodał kilka podprogramów, aby zaadoptować istniejące kody do konkretnych obliczeń.

W konkluzji stwierdzam, że rozprawa Pana Anada Manaparambil'iego p.t. „Nonequilibrium transport and Kondo correlations in nanoscale systems” spełnia warunki stawiane rozprawom doktorskim, na podstawie art. 187 Ustawy Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce z dnia 20 lipca 2018 r. i wnioskuję do Rady Dyscyplin Nauki Fizyczne i Astronomia, UAM w Poznaniu, o dopuszczenie Kandydata do dalszych etapów postępowania doktorskiego w dziedzinie nauk ścisłych i przyrodniczych, w dyscyplinie nauki fizyczne.



Krzysztof Byczuk