

Recenzja rozprawy doktorskiej mgr Marali Jafari zatytułowanej „Electronic, magnetic and transport properties of selected van der Waals heterostructures”.

Przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska mgr Marali Jafari została wykonana na Uniwersytecie im. Adama Mickiewicza w Poznaniu (Wydział Fizyki i Astronomii) w dyscyplinie Nauk Fizycznych w dziedzinie Nauk Ścisłych i Przyrodniczych. Jej promotorem była dr hab. Anna Dyrdał, prof. UAM a promotorem pomocniczym dr Martin Gmitra.

Tematyka pracy koncentruje się wokół fundamentalnych problemów fizyki dwuwymiarowych materiałów magnetycznych oraz heterostruktur van der Waalsa. W centrum zainteresowania znajduje się pytanie, w jaki sposób struktura krystaliczna i elektronowa układów o zredukowanej wymiarowości determinuje ich własności magnetyczne, transportowe oraz topologiczne. Jednym z zasadniczych zagadnień jest stabilność uporządkowania magnetycznego w układach 2D. W kontekście twierdzenia Mermin–Wagnera szczególnego znaczenia nabiera rola anizotropii magnetycznej oraz sprzężenia spin–orbita jako mechanizmów umożliwiających istnienie długozasięgowego porządku w temperaturze skończonej. Z tym wiąże się problem wyznaczania parametrów mikroskopowych – stałych wymiany i energii anizotropii – oraz ich wpływu na temperaturę Curie i charakter przejść fazowych. Tematyka ta obejmuje również zagadnienie konkurencji między sprzężeniem ferro- i antyferromagnetycznym w układach wielowarstwowych oraz możliwość realizacji sztucznie projektowanych konfiguracji magnetycznych w strukturach o atomowej grubości. Drugim istotnym nurtem jest inżynieria własności elektronowych i magnetycznych poprzez czynniki zewnętrzne. Obejmuje to wpływ naprężenia mechanicznego (strain engineering), skręcenia warstw (twistronics), domieszkania oraz efektów bliskości (proximity) w heterostrukturach. W tym kontekście analizowana jest wrażliwość struktury pasmowej i parametrów magnetycznych na subtelne zmiany geometrii, symetrii i hybrydyzacji orbitali. Szczególnie istotny jest problem sterowania stanem magnetycznym i topologicznym za pomocą kontrolowanych modyfikacji strukturalnych, co stanowi podstawę koncepcji funkcjonalnych materiałów spintronicznych. Kolejnym ważnym obszarem jest związek między strukturą pasmową a zjawiskami transportowymi, w tym magnetooporem, efektami dolinowymi oraz topologicznymi efektami Halla. W materiałach 2D, w których występują silne efekty bliskości wymiennej i spin–orbitalnej, możliwe staje się generowanie nietrywialnych faz topologicznych. Problematyka ta dotyczy zależności między symetrią układu, inwersją pasm, sprzężeniem spin–orbita oraz topologicznymi niezmiennikami opisującymi stan podstawowy. Szczególne znaczenie ma możliwość przejść topologicznych indukowanych zmianą konfiguracji magnetycznej bądź naprężeniem. Całość tematyki spaja konsekwentne wykorzystanie metod pierwszych zasad jako narzędzia do ilościowego opisu układów silnie skorelowanych i magnetycznych w dwóch wymiarach. Badania te wpisują się w szerszy kontekst projektowania materiałów o kontrolowanych własnościach spinowych i topologicznych, z myślą o zastosowaniach w spintronice, nanoelektronice oraz technologiach kwantowych.

Wyniki badań Autora są opublikowane w 4 artykułach w czasopismach recenzowanych oraz jednym preprincie (w momencie pisania recenzji zaakceptowanym przez czasopismo). We wszystkich przypadkach mgr Jafari jest pierwszym autorem.

Praca składa się z siedmiu rozdziałów i dodatku, z czego pierwsze trzy są wprowadzeniem w tematykę i metodologię, pozostałe natomiast przedstawiają reprinty publikacji autora, poprzedzone krótkimi streszczeniami (na 1-3 strony).

W krótkim wstępie (**Rozdział 1**) Autor prezentuje motywację do badań nanostruktur z przedstawionych dalej materiałów, oraz, co najważniejsze, cel pracy. Jest nim odpowiedź na pytanie w jaki sposób zarówno wewnętrzne, jak i indukowane przez efekt bliskości właściwości magnetyczne, a także zjawiska transportu ładunku i spinu, mogą być precyzyjnie dostrajane w dwuwymiarowych układach takich jak grafen, silicen, dichalkogenki metali przejściowych (TMDC) oraz skrócone heterostrukтуры van der Waalsa oparte na grafenie.

W **Rozdziale 2** Autor podaje podstawowe informacje o materiałach tworzących nanostruktury będące przedmiotem badań. Część ta jest podzielona na podrozdziały: nt. grafenu i silicenu, nt. magnetycznych materiałów van der Waalsa, nt. heterostruktur vdW oraz, ostatni, nt. twistroniki. Szczególnie podrozdziały drugi i trzeci są istotne ze względu na treść rozprawy. Autor przedstawia tam dość krótki wstęp dotyczący materiałów magnetycznych 2D w ogólności. Dalej, bardziej szczegółowo, opisuje dwie główne rodziny materiałów magnetycznych 2D jakimi są jodki chromu (CrI_3 i pochodne) oraz dichalkogenki oparte o wanad (V). Część ta jest dość kompaktowa, ale zawiera najważniejsze informacje, wraz z bogatymi odnośnikami do literatury. Dalej przedstawione są podstawy modelowania właściwości magnetycznych struktur vdW. Wspomniane są tutaj metody modelowe oparte o hamiltonian Heisenberga (z członami odpowiadającymi za wymianę, anizotropię i oddziaływanie DM), oparte o przybliżenie średniego potencjału (w implementacji DFT) oraz metody Monte Carlo. Część ta jest być może nieco zbyt krótka, brakuje szczegółów dot. metodologii – tym bardziej, że ww. metody są przeważnie stosowane wspólnie. Kolejny podrozdział, nt. heterostruktur vdW nie odbiega jakością od podrozdziału dot. materiałów 2D. Całość zamyka krótki podrozdział nt. nowej dziedziny jaką jest twistronika czyli dział badań nad tym, w jaki sposób kąt (tzw. skręt) między warstwami materiałów dwuwymiarowych może zmieniać ich właściwości elektryczne. Również ten podrozdział nie budzi zastrzeżeń.

Rozdział 3 to główna „część teoretyczna” rozprawy. W pierwszych trzech podrozdziałach Autor przedstawia podstawy problematyki kwantowych układów wielociałowych. oraz przybliżenia jakie są niezbędne w przypadku implementacji użytych w jego pracy badawczej metod obliczeniowych (jak np. przybliżenie średniego pola). Najdłuższy jest podrozdział 3.3, w którym Autor dokładnie (może nawet zbyt szczegółowo) przedstawia podstawy teorii funkcjonału gęstości, wraz z wyprowadzeniami. Kolejny podrozdział zawiera szczegóły DFT dotyczące modelowania oddziaływania vdW, metody DFT+U oraz sposobu implementacji oddziaływania spin-orbita w metodzie Kohna-Shama. Kolejny podrozdział, 3.5, dotyczy nieco innego podejścia, mianowicie modelowania nanostruktur w oparciu o metody ciasnego wiązania (TB) i $k \cdot p$. Zawiera on bardzo skrótowy opis hamiltonianów TB i niskienergetycznych stosowanych w fizyce nanostruktur i mogłyby być obszerniejszy. Ostatni podrozdział, 3.6, to bardzo dobrze napisany wstęp do teoretycznego modelowania transportu elektronowego w nanostrukturach.

Następne rozdziały to reprinty opublikowanych prac.

Rozdział 4 – „Electronic and magnetic properties of silicene monolayer under bi-axial mechanical strain: First principles study” J. Magn. Magn. Mater. 554 (2022) 169260

W pracy przeanalizowano wpływ domieszkowania monowarstwy silicenu atomami chromu oraz działania dwuosiowego naprężenia mechanicznego na jej właściwości elektronowe i magnetyczne. Rozważono trzy konfiguracje podstawienia: monomer, dimer poziomy oraz dimer pionowy, badając ich stabilność strukturalną, momenty magnetyczne oraz charakter pasmowy.

Obliczenia wykonano w ramach DFT (GGA-PBE) z użyciem zoptymalizowanych pseudopotencjałów ONCV. Wykazano, że w zależności od rodzaju podstawienia, układ może przyjmować charakter metaliczny, półmetaliczny lub półprzewodnikowy. Szczególnie interesującym wynikiem jest uzyskanie szczeliny energetycznej rzędu 0.13 eV w przypadku pionowego dimera Cr przy zerowym odkształceniu. Analiza wpływu naprężenia wykazała, że

moment magnetyczny w konfiguracji monomerowej i pionowej jest relatywnie odporny na odkształcenia, natomiast dla dimera poziomego ulega redukcji zarówno przy ściskaniu, jak i rozciąganiu.

Wkład M.A. Jafari polegał na przeprowadzeniu obliczeń strukturalnych i magnetycznych w funkcji naprężenia, analizie zmian struktury pasmowej oraz momentów magnetycznych, a także interpretacji wyników w kontekście inżynierii pasmowej i spintronicznych zastosowań silicenu.

Rozdział 5 – „Electronic and magnetic properties of 2D vanadium-based transition metal dichalcogenides” Sci. Rep. 13, 20947 (2023)

Praca stanowi kompleksowe, systematyczne studium właściwości elektronowych i magnetycznych mono- oraz dwuwarstwowych dichalkogenków wanadu VX_2 ($X = S, Se, Te$) w fazie 2H, z naciskiem na ilościowe wyznaczenie parametrów mikroskopowych determinujących stabilność uporządkowania magnetycznego w dwóch wymiarach. Punktem wyjścia są obliczenia z pierwszych zasad w ramach DFT (z uwzględnieniem korekcji Coulomba U dla stanów 3d wanadu), które pozwalają określić strukturę pasmową, momenty magnetyczne jonów V oraz energię względną różnych konfiguracji spinowych (NM, FM, AFM).

Kluczowym zagadnieniem fizycznym jest natura sprzężenia wymiennego w układach jedno- i dwuwarstwowych oraz jego zależność od rodzaju tlenowca. W szczególności analizowana jest konkurencja między sprzężeniem ferromagnetycznym wewnątrz warstwy a możliwym sprzężeniem antyferromagnetycznym pomiędzy warstwami. Wyniki wskazują, że monowarstwy wszystkich badanych materiałów stabilizują stan ferromagnetyczny, natomiast w dwuwarstwach charakter sprzężenia międzywarstwowego zależy od chemii układu – co czyni te systemy naturalnymi kandydatami do realizacji dwuwymiarowych zaworów spinowych.

Na podstawie energii całkowitych dla różnych konfiguracji magnetycznych wyznaczono efektywne parametry wymiany, które następnie wykorzystano do konstrukcji klasycznego hamiltonianu spinowego typu Heisenberga z uwzględnieniem anizotropii magnetycznej. Umożliwiło to przejście od mikroskopowego opisu elektronowego do opisu kolektywnych własności magnetycznych. W dalszym etapie przeprowadzono symulacje temperatury Curie metodami Monte Carlo, analizę pętli histerezy oraz wyznaczenie widm fal spinowych. Porównanie wyników analitycznych modelu efektywnego z bezpośrednimi obliczeniami numerycznymi wykazało dobrą zgodność, potwierdzając spójność przyjętej metodologii wieloskalowej.

Istotnym elementem pracy jest również analiza roli anizotropii magnetycznej jako czynnika stabilizującego uporządkowanie w układach 2D. Wykazano, że wartości temperatur Curie dla VS_2 i VSe_2 przekraczają temperaturę pokojową, co jest zgodne z dostępnymi danymi eksperymentalnymi i czyni te materiały perspektywnymi dla zastosowań spintronicznych. Z kolei w przypadku VTe_2 , większa odległość międzyatomowa i słabsze sprzężenie wymienne prowadzą do obniżenia temperatury Curie, szczególnie w układach dwuwarstwowych.

Praca ma charakter systematyczny i porównawczy: ukazuje, w jaki sposób zmiana tlenowca wpływa na hybrydyzację orbitali 3d–p, szerokość pasm, wartości momentów magnetycznych oraz parametry wymiany. Dzięki połączeniu obliczeń DFT z modelowaniem efektywnym stanowi spójne opracowanie łączące opis mikroskopowy z makroskopowymi właściwościami magnetycznymi, dostarczając podstaw do projektowania dwuwymiarowych materiałów o kontrolowanych parametrach magnetycznych.

Wkład M. Jafari obejmował wykonanie obliczeń DFT dla mono- i dwuwarstwowych struktur, analizę konfiguracji magnetycznych i parametrów wymiany, współudział w konstrukcji modelu efektywnego oraz interpretację wyników w kontekście stabilności magnetyzmu w dwóch wymiarach.

Rozdział 5 – „Effect of strain on the electronic and magnetic properties of bilayer T-phase VS_2 : A first-principles study” J. Magn. Mater. 589 (2024) 171618

Publikacja poświęcona jest szczegółowej analizie wpływu dwuosiowego naprężenia na właściwości strukturalne, elektronowe i magnetyczne dwuwarstwowego VS_2 w fazie T (koordynacja oktaedryczna). Obliczenia wykonano w ramach DFT z poprawką GGA+U ($U = 2$ eV) oraz uwzględnieniem oddziaływań van der Waalsa.

Autorzy wykazali, że naprężenie istotnie modyfikuje parametry strukturalne (odległości V–V i V–S), co przekłada się na zmianę parametrów magnetycznych. W szczególności energia anizotropii magnetycznej (MAE) wykazuje wyraźną zależność od odkształcenia: naprężenie rozciągające wzmacnia anizotropię łatwej płaszczyzny, natomiast ściskanie prowadzi do jej zaniku. Jednocześnie parametry wymiany i temperatura Curie ulegają znacznemu obniżeniu przy ścisaniu przekraczającym około -4% . Praca ma istotne znaczenie dla projektowania dwuwymiarowych magnetyków o sterowalnych właściwościach.

Wkład M. Jafari obejmował przeprowadzenie obliczeń DFT+U, wyznaczenie parametrów wymiany i anizotropii, analizę zależności od naprężenia oraz interpretację zmian temperatury Curie i stabilności faz magnetycznych.

Rozdział 6 – „Spin valve effect in two-dimensional VSe_2 system” J. Magn. Magn. Mater. 548 (2022) 168921

Praca dotyczy teoretycznej analizy efektu zaworu spinowego w dwuwarstwowym dichalkogenku VSe_2 . Autorzy wykazują, że naturalna dwuwarstwowa struktura VSe_2 stanowi atomowo cienki odpowiednik klasycznego zaworu spinowego, w którym przejście między konfiguracją antyrównoległą i równoległą momentów magnetycznych prowadzi do wyraźnej zmiany oporu.

W pracy przeprowadzono obliczenia struktury elektronowej w ramach DFT (z korekcją van der Waalsa), a następnie, wykorzystując formalizm Landauera i metodę funkcji Greena w podejściu NEGF, wyznaczono przewodnictwo w geometrii prądu płynącego w płaszczyźnie (CIP). Rozważono obie struktury krystalograficzne: fazę H (AB stacking) oraz fazę T (AA stacking). Wykazano, że przejście z konfiguracji AFM do FM generuje istotny efekt magnetooporu zależny od położenia poziomu Fermiego, a więc możliwy do sterowania napięciem bramki. Uzupełniając przeanalizowano transport cieplny i właściwości termoelektryczne, wskazując na możliwość uzyskania magnetotermoooporu.

Wkład M.A. Jafari obejmuje współudział w obliczeniach pierwszych zasad (DFT), implementację i analizę obliczeń transportowych w formalizmie NEGF, a także współinterpretację uzyskanych charakterystyk magnetotransportowych w kontekście dwuwymiarowych zaworów spinowych.

Rozdział 7 – „Exchange and spin-orbit proximity driven topological and transport phenomena in twisted graphene/ CrI_3 heterostructures” arXiv:2509.11670 (2025)

W pracy przedstawiono kompleksową analizę właściwości elektronowych, magnetycznych i topologicznych grafenu osadzonego na monowarstwie CrI_3 . W pierwszym etapie wyznaczono taki kąt skręcenia warstw, dla którego stożki Diraca grafenu lokuje się w szczelinie energetycznej CrI_3 , co minimalizuje ich hybrydyzację z pasmami podłoża i pozwala na dominację efektów bliskości. Następnie wyprowadzono efektywny niskoenergetyczny hamiltonian opisujący grafen pod wpływem oddziaływań wymiennych i spin-orbitalnych, który poprawnie odtwarza fizykę heterostruktury skręconego grafenu na CrI_3 . Wykazano, że układ realizuje fazę izolatora Cherna z kwantowanym anomalnym przewodnictwem Halla. Szczegółowo przeanalizowano anomalny i dolinowy efekt Halla oraz odpowiadające im efekty Nernsta. Charakterystyczne załamania w przewodnictwie Halla oraz ostre maksima w współczynnikach Nernsta, pojawiające się przy przesuwaniu poziomu chemicznego przez krawędzie kolejnych pasm, umożliwiają bezpośrednie wyznaczenie szerokości szczeliny energetycznej i rozszczepień pasm na podstawie pomiarów transportowych. Wykazano również istotny kontrast dolinowy: szczeliny energetyczne w punktach K i K' różnią się o około 2 meV, co pozwala – poprzez zewnętrzne pole elektryczne lub magnetyczne – selektywnie zamykać szczelinę w jednej dolinie, zachowując ją w drugiej. Otwiera

to drogę do inżynierii pasm zależnej od doliny oraz realizacji transportu jedno-dolinowego kontrolowanego położeniem poziomu Fermiego.

Podkreślono także potencjał magnetycznych heterostruktur van der Waalsa w zastosowaniach kwantowych i spintronicznych. W szczególności wykazano, że naprężenie może przełączać kwantowe anomalne przewodnictwo Halla między wartością odpowiadającą dwóm kwantom przewodnictwa a zerem, co sugeruje możliwość kodowania logicznych stanów „1” i „0”. Dodatkowo omówiono znaczenie dużego kąta Rashby w skręconym grafenie na CrI_3 , który prowadzi do blokowania spin-pęd oraz nietrywialnej polaryzacji spinowej w stanie nierównowagowym. Taka polaryzacja może generować momenty spinowo-orbitalne oddziałujące z warstwą ferromagnetyczną, co ma istotne znaczenie dla dynamiki magnetyzacji i przyszłych zastosowań w urządzeniach spinowo-orbitalnych.

Wkład M. Jafari obejmuje współudział w konstrukcji superkomórek skręconych struktur, wykonanie i analizę obliczeń DFT, współtworzenie efektywnego modeluiskoenergetycznego oraz analizę własności topologicznych i transportowych badanego układu.

Rozprawa kończy się krótkim **podsumowaniem**, które jednak nieco w zbyt małym stopniu podkreśla wagę wyników otrzymanych w publikacjach.

Atutem całej rozprawy są bogate odniesienia do literatury, a lista **referencji** zawiera aż 441 pozycji.

Rozprawa posiada też **dodatek** dotyczący kodów numerycznych użytych przez Autora w zamieszczonych publikacjach. Również ten dodatek, moim zdaniem, powinien być nieco bardziej obszerny, aby czytelnik mógł się dokładniej zapoznać z narzędziami użytymi przez Autora, bez konieczności odwoływania się do dokumentacji.

Podsumowanie

Przedstawiony cykl pięciu publikacji stanowi spójne, konsekwentnie rozwijane i merytorycznie dojrzałe osiągnięcie naukowe w obszarze fizyki dwuwymiarowych materiałów magnetycznych i heterostruktur van der Waalsa. Autor podejmuje aktualne i fundamentalne problemy dotyczące stabilności magnetyzmu w dwóch wymiarach, roli oddziaływań wymiennych i spin-orbita, efektów bliskości oraz możliwości inżynierii stanów topologicznych i transportowych w układach o zredukowanej wymiarowości.

Na szczególne podkreślenie zasługuje systematyczne powiązanie obliczeń pierwszych zasad z modelowaniem efektywnym oraz analizą zjawisk transportowych. W pracach tych nie ograniczono się do wyznaczenia struktury pasmowej, lecz konsekwentnie przechodzono od opisu mikroskopowego do parametrów makroskopowych – takich jak stałe wymiany, energia anizotropii magnetycznej, temperatura Curie, charakterystyki magnetooporowe czy przewodnictwo topologiczne. Taka wieloskalowa metodologia znacząco podnosi wartość poznawczą uzyskanych wyników oraz ich użyteczność dla projektowania materiałów funkcjonalnych.

Wyniki dotyczące wanadowych dichalkogenków wnoszą istotny wkład do dyskusji nad naturą sprzężenia międzywarstwowego i stabilnością magnetyzmu w materiałach 2D, wskazując konkretne mechanizmy umożliwiające realizację atomowo cienkich zaworów spinowych. Z kolei badania nad heterostrukturą grafen/ CrI_3 rozszerzają tę problematykę na grunt topologicznej spintroniki, pokazując możliwość kontrolowanego przejścia między fazą izolatora Cherna a fazą trywialną poprzez manipulację kątem skręcenia i naprężeniem. Tego typu wyniki mają wyraźny potencjał oddziaływania na rozwój dziedziny twistroniki i projektowania układów o kontrolowanej topologii pasm.

Całość dorobku świadczy o bardzo dobrym opanowaniu zaawansowanych metod obliczeniowych oraz umiejętności formułowania i rozwiązywania istotnych problemów fizycznych. Prace te nie tylko poszerzają aktualną wiedzę na temat magnetyzmu i zjawisk topologicznych w materiałach van der Waalsa, lecz także wskazują konkretne strategie inżynierii ich właściwości. W mojej ocenie

przedstawiony zestaw publikacji stanowi wartościowy i znaczący wkład w rozwój współczesnej fizyki nanostruktur oraz w pełni uzasadnia pozytywną ocenę rozprawy doktorskiej.

Dlatego też w podsumowaniu, oceniam wysoko wyniki uzyskane przez doktoranta. Wyniki są oryginalne i zostały opublikowane w bardzo dobrych czasopismach.

Stwierdzam, że przedstawiona mi do recenzji praca spełnia wszystkie wymagania określone w ustawie o stopniach naukowych i tytule naukowym stawiane rozprawom doktorskim i dlatego też wnioskuję o dopuszczenie mgr inż. Marali Jafari do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

Ponadto, oceniając bardzo wysoko zawarte w rozprawie osiągnięcia naukowe mgr inż. Marali Jafari, a także jego wysokie umiejętności dotyczące użycia zaawansowanych metod obliczeniowych w fizyce nanostruktur wnoszę o wyróżnienie przedstawionej mi do oceny rozprawy (wszelkie formalne wymagania zostały również spełnione).

Krzysztof Zborecki