

Prof. Maciej Kolwas

Instytut Fizyki PAN

Dziekanat Wydziału Fizyki UW
Seksja ds. pracowniczych
Wpłynęło dn. 20.10.14
podpis _____

Warszawa 26-10-2014

Recenzja pracy doktorskiej mgr. Tomasza Kardasia

"Time-resolved studies of vibronic and vibrational transitions in complex media"

Praca poświęcona jest badaniom doświadczalnym połączonym z opisem teoretycznym i modelowaniem oddziaływania ultrakrótkich impulsów światła ze złożonymi układami mającymi możliwość wewnętrznej vibracji ciała stałym (diamentem) oraz cząsteczkami β -karotenu.

Część pierwsza zatytułowana "Stimulated Raman Scattering in supercontinuum generation in diamond" jest badaniem doświadczalnym oraz modelowaniem zachowania się impulsu światła propagującego się w kryształ diamentu. Właściwym problemem jest zbadanie ewentualnego wpływu impulsowego wymuszonego rozpraszania Ramana na ewolucję impulsu w czasie i przestrzeni w trakcie propagacji w silnie nieliniowym kryształ.

Druga część, "Intramolecular vibrational relaxation and transient vibrational inversion of population in trans- β -apo-8'-carotenal" jest badaniem spektroskopowym wzbudzenia stanów β -karotenu, metodą czasowo-rozdzielczego, femtosekundowego, wymuszonego rozpraszania Ramana połączonym z półklasycznym modelowaniem obserwowanych zjawisk.

Tak więc Część pierwsza dotyczy rozchodzenia (propagacji) impulsu w ośrodku silnie nieliniowym, część druga jest poświęcona badaniu rozchodzenia się energii dostarczonej w postaci ultrakrótkiego impulsu wewnątrz złożonej cząsteczki.

Praca napisana jest w języku angielskim. Składa się z czterech części i dodatków.

Rozdział I to złożony z 3 głównych części wstęp. Jako pierwsza część wstępu podana została motywacja tej części pracy –doświadczalne i teoretyczne (modelowanie) badanie impulsowego wymuszonego zjawiska Ramana stosowanego do badania układów o różnicy energii wzbudzenia zbliżonej do energii vibracyjnej ośrodka.

W sumie część wstępna liczy 33 strony i napisanie jej było pewnie pouczające dla Autora i może służyć jako wyczerpujący przegląd tematyki i metod.

Rozdział drugi (34 – 85 str) stanowi opis wyników badań wymuszonego zjawiska rozpraszania ramanowskiego obserwowanego wraz z generacją supercontinuum w diamentcie (The Stimulated Raman Scattering in supercontinuum generation in diamond).

W części wstępnej opisano historię badań wytwarzania supercontinuum.

Następnie został opisany układ doświadczalny (w European Laboratory for Nonlinear Spectroscopy we Florencji) do badań generacji supercontinuum.

W rozdziale 2.2 przedstawione zostały wyniki doświadczalne.

Stanowią one widmo otrzymanego Supercontinuum dla różnych natężeń światła laserowego.

Rys 2.2 2.3 i 2.4 przedstawiające Rys 2.4 widmo supercontinuum dla różnych energii Są bardzo interesujące i zawierają dużo informacji, m.in. o udziale zjawiska ramana w tworzeniu Supercontinuum. Pik pochodzący od rozpraszania Ramana jest względnie nieduży, ale obserwowalny. Trochę brak informacji jak mierzono wielkość output intensity.

W sumie w rozdziale opisującym badania doświadczalne brakuje opisu obserwowanych wielkości fizycznych ograniczającego się niekiedy do napisu na osi wykresów „light intensity”.

Następnie w pracy wyczerpująco (również dla recenzenta) opisano modelowanie supercontinuum i symulację wyników doświadczalnych

Otrzymano wpływ zjawiska Ramana na Supercontinuum. Sam kształt modelowanego Supercontinuum zawiera odtworzenie części widma zbliżonej do długości fali światła wzbudzającego będące najbardziej intensywną częścią widma. Jednak nie odtwarza obszarów dalszych widmowo (rys 2.11 i 2.12) ani pojawiających się schodków. Wpływ zjawiska Ramana zgadza się jedynie jakościowo z danymi doświadczalnymi. Brak mi było wyraźnego stwierdzenia tego faktu z choć sugestią przyczyn.

Niemniej jednak otrzymany model komputerowy pozwolił na ciekawą analizę pojawiających się prążków, samoogniskowanie, obecność tzw. chirp-u itp. jego realizacja jest niewątpliwym sukcesem. Autor podsumował tę część pracy stwierdzeniem dotyczącym udziału zjawiska Raman w tworzeniu Supercontinuum:

“The fact, that in the case of diamond the stimulated Raman response weakly influences the generated supercontinuum spectrum, confirms reasonability of neglecting its influence in other bulks, like fused silica or sapphire, where Raman gain is much weaker.”

Następne rozdziały dotyczą zagadnienia badania przejść wibronowych w cząsteczce trans- β -apo-8'-carotenalu z zastosowaniem zostało rozdzielczego czasowo femtosekundowego wymuszony rozpraszanie ramanowskiego.

Część doświadczalną wykonano na wybudowanym przez Autora układzie doświadczalnym w European Laboratory for Nonlinear Spectroscopy specjalnie do użycia na cele tego doktoratu.

Badano doświadczalnie i przeprowadzono złożone modelowanie komputerowe trudnego problemu redystrybucji energii wzbudzenia na stany wibronowe cząsteczki.

Trzeba podkreślić, że problem dystrybucji pochłoniętej energii jest jednym z ważniejszych problemów dotyczących fotostabilności, reakcji fotochemicznych i innych zagadnień umożliwiającymi absorpcję i wykorzystanie energii przez organizmy żywe. Podjęcie takiego tematu świadczy jest zawsze poważnym wyzwaniem.

Najpierw opisano historię badań cząsteczki karotenoidów

Następnie opisano część doświadczalną - rozdzielczą czasowo technikę femtosekundowego wymuszonego zjawiska Ramana i otrzymane wyniki doświadczalne.

W otrzymanych widmach zależnych od czasu zaobserwowano m.in. opóźnione w czasie linie ze stanu S_1 . Linie te wykazywały ciekawą czasową ewolucję - były ujemne przez 500fs. Zinterpretowane to zostało jako powstanie przejściowej inwersji obsadzeń pomiędzy stanami wibracyjnymi stanu S_1 .

Aby opisać zachowanie się obserwowanych doświadczalnie sygnałów Autor konstruuje począwszy od równań Heisenberga-Lagevina model przepływu energii przybliżając złożoną strukturę energetyczną cząsteczki poprzez układ 3 poziomów elektronowych mających substrukturę wibracyjną.

Rozważane są dwa modele - ogólny i przybliżony - adiabatyczny. .

Prostszy model („adiabatyczny”) służył jako wstępne przybliżenie do modelu ogólniejszego, co umożliwiło skuteczne obliczenia numeryczne. Modelowanie skończyło się sukcesem i symulacją obserwowanych zjawisk umożliwiającą ich dogłębne zrozumienie. Poprzez umożliwienie ewolucji czasowej obsadzeń stanów wibracyjnych udało się m. in. odtworzyć zjawisko przejściowej inwersji (odwrócenia) obsadzeń tych stanów.

Doceniając wiedzę zdobytą w czasie analizy problemu zawarty w rozprawie opis teoretyczny wydaje się być zbyt rozbudowany, szczególnie w częściach wstępnych zawierających treści podręcznikowe. Model startujący jako kwantowo mechaniczny ewoluuje do półklasycznego modelu zależnego od czasu ramanowskiego pompowania optycznego i równań bilansu stanów energetycznych cząsteczek. Problem jednak jest bardzo złożony numerycznie ze względu na charakter czasowy obserwowanych zjawisk i uczestnictwo wielu stanów - 3 w stanie S_1 , 2 w stanie S_0 , 2 w stanie S_2 nie licząc stanów wirtualnych. Z sukcesem wyniki modelowania dopasowane zostały do wyników doświadczalnych. Zrekonstruowano przede wszystkim czasową inwersję obsadzenia poziomów wibracyjnych stanu S_1 .

Podsumowując:

Tak jak w części pierwszej brak mi dyskusji (opisu) badanych doświadczalnie obserwabli i ich związku z modelowaniem. Precyzyjny związek wielkości mierzonych i liczonych jest podstawą zrozumienia związku pomiarem z teorią/modeliem.

Praca liczy 212 stron, zawiera 198 pozycji bibliograficznych. Składa się z dwu praktycznie niezależnych, całkowicie wystarczających na pracę doktorską każda, części.

Opisy teoretyczne i opisy metod komputerowych modelowania są bardzo szczegółowe, konstruowane od niekiedy liczących wiele lat podstaw.

Na przykład wstęp rozpoczyna opis sił elektrycznych, modelowanie wzbudzenia karotenu – równanie Schrodingera a w dodatku A relacje komutacji dla fermionów. Podstawy teoretyczne rozpoczynają się od oscylatora harmonicznego i układu dwupoziomowego.

Do każdego zagadnienia podano wiele pozycji literaturowych, często podręczników, np. dwa podręczniki elektrodynamiki i dwa dotyczące laserów.

Z całym szacunkiem dla wkładu pracy Autora taki zakres opisu wydaje znacznie przesadzony jeśli w ogóle potrzebny.

W sumie uważam jednak, że jest to praca wyróżniająca się, bardzo dobra, tak doświadczalnie, jak i teoretycznie. Zawiera badania doświadczalne łącznie z budową układu doświadczalnego. Poświęcona jest wielu zjawiskom poprzez ich obserwację, opis teoretyczny i modelowanie numeryczne. Modelowanie komputerowe dopasowywane jest jakościowo i ilościowo do obserwowanych zjawisk.

Tak więc nie mam wątpliwości, że praca pełnia wymogi stawiane pracom doktorskim i wnoszę o dopuszczenie do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

