

Recenzja pracy doktorskiej

Arumona Edward Arumona

Strongly coupled light in optical nanostructures based on excitonic materials

Cel pracy

W recenzowanej rozprawie podjęto badanie silnego sprzężenia między modami optycznymi a ekscytonami w samohybrydujących się, jednoosiowych, hiperbolicznych wielowarstwowych nanosferoidach. Przeprowadzono systematyczną analizę wpływu geometrii i kształtu na zjawiska sprzężenia. Analizie poddano nanosferoidy o szerokim zakresie współczynników kształtu, obejmującym geometrie wydłużone, sferyczne oraz spłaszczone.

Praca **stanowi rozwinięcie wiedzy** poprzez zbadanie samohybrydującego się silnego sprzężenia w nowym typie nanostruktur. Takie podejście łączy właściwości metamateriałów hiperbolicznych z kontrolą geometrii.

Struktura rozprawy przedstawia się następująco:

Rozdziały od 1 do 3 stanowią przegląd literatury, w którym omówiono zjawisko silnego sprzężenia oraz podstawowe pojęcia kluczowe dla niniejszej pracy.

Rozdział 4 zawiera opis metodologii wykorzystanej w badaniach. Przeprowadzono w nim studia numeryczne przy użyciu metod elektrodynamiki klasycznej oraz modeli sprzężonych oscylatorów harmoniczych, aby przeanalizować wpływ kształtu na samohybrydujące się silne sprzężenie.

Rozdział 5 skupia się na badaniu modów optycznych w jednoosiowych hiperbolicznych nanosferoidach wielowarstwowych. Przedstawiono w nim odpowiedź optyczną tych struktur w polu elektromagnetycznym, co stanowi fundament dla dalszych analiz.

W rozdziale 6 podjęto temat samohybrydującego się silnego sprzężenia między modami optycznymi a ekscytonami w wielowarstwowych nanosferoidach. Wykorzystując wyniki analizy modów z rozdziału 5, sprawdzono, jak mody te oddziałują z przejściami ekscytonowymi wewnątrz nanostruktur.

Rozdział 7 stanowi rozwinięcie tych wyników, skupiając się konkretnie na zjawiskach sprzężenia w trójwarstwowych nanosferoidach. Podczas gdy rozdziały 5 i 6 dotyczyły struktur dwuskładnikowych (srebro-krzemionka), tutaj przeanalizowano nanostruktury składające się z trzech materiałów: srebra, krzemionki oraz dichalkogenidów metali przejściowych (TMDCs).

Rozdział 8 stanowi podsumowanie rozprawy; zebrano w nim najważniejsze wnioski oraz przedstawiono perspektywy dla przyszłych kierunków badań.

Pierwszą częścią oryginalnych badań jest analiza modów optycznych jednoosiowych hiperbolicznych nanosferoid zbudowanych z wielowarstw srebra i krzemionki. Ich odpowiedź optyczna i sprzężenie modów są badane w odniesieniu do ich kształtu i wewnętrznej struktury, przy czym współczynnik kształtu zmienia się od $1/3$ (wydłużony) przez 1 (sferyczny) do 3 (spłaszczony). Odpowiedź optyczna zależy od anizotropii materiału, kształtu i rodzaju oświetlenia. Wyniki pokazują, że w układzie występują dwa dominujące mody: dipol elektryczny (ED) sprzężony z kwadrupolem magnetycznym (MQ) oraz dipol magnetyczny (MD) sprzężony z kwadrupolem elektrycznym (EQ). Nanocząstki o spłaszczonym kształcie wykazują mniej korzystne własności modów optycznych w porównaniu z tym o wydłużonych i sferycznych geometriach.

Bazując na powyższych wynikach, druga część badań obejmuje auto-hybrydujące silne sprzężenie modów optycznych z ekscytonami w nanocząstkach o wydłużonych i sferycznych geometriach.

Zakłada się, że ekscytony są umieszczone w matrycy dielektrycznej, która wchodzi w skład warstwowego materiału hiperbolicznego. Nanocząstki wydłużone i sferyczne wykazują duże rozszczepienie Rabiego, umożliwiając silne sprzężenie modów optycznych (ED i MD) z ekscytonami. Wyniki pokazują, w jakich warunkach mody MD lub ED oferują silniejsze sprzężenie z przejściami ekscytonowymi lub molekularnymi w badanych nanocząstkach.

Bazując na wydajnym dipolu magnetycznym, trzecia część badań koncentruje się na ocenie praktycznej realizacji auto-hybryduacji w reżimie silnego sprzężenia modów MD z ekscytonami.

W tej części badań wykorzystuje się dichalkogenki metali przejściowych jako składnik materiału hiperbolicznego: MoS₂ (disiarczek molibdenu), MoSe₂ (diselenek molibdenu), WS₂ (disiarczek wolframu) i WSe₂ (diselenek wolframu). Najpierw dokonano oceny ogólnych własności ekscytonów dichalkogenków metali przejściowych z modami nanocząstek hiperbolicznych dla prostych materiałów dwuskładnikowych (srebro plus dichalkogenek), które jednak charakteryzują się brakiem silnego sprzężenia z powodu rozstrojenia widmowego modów z ekscytonami.

Aby rozwiązać to ograniczenie, wprowadzono dodatkową dielektryczną warstwę tworząc trójwarstwowy materiał hiperboliczny (srebro/krzemionka/dichalkogenek). Wyniki pokazują, że w nanocząstkach zbudowanych z takich materiałów silne sprzężenie z ekscytonami może być osiągnięte zarówno dla modu dipola magnetycznego jak i elektrycznego, co pokazano na przykładzie nanocząstki zbudowanej ze srebra/krzemionki/WS₂ i srebra/krzemionki/MoS₂.

Podsumowując, niniejsza rozprawa przedstawia wgląd w to, jak geometria, rozmiar i struktura wewnętrzna wpływają lub tłumią silne sprzężenie w jednoosiowych hiperbolicznych wielowarstwowych nanosferoidach. Mogą one usprawnić projektowanie urządzeń optoelektronicznych nowej generacji.

Metody numeryczne i obliczeniowe

Analizy teoretyczne w niniejszej pracy przeprowadzono przy użyciu metody macierzy przejścia (T-matrix), metodą różnic skończonych w dziedzinie czasu (FDTD) z użyciem teorii ośrodka efektywnego (EMT).

Metoda FDTD i dekompozycja multipolowa Metoda różnic skończonych w dziedzinie czasu (FDTD) to dokładne podejście 3D, powszechnie stosowane do modelowania urządzeń i materiałów nanofotonicznych. Choć metoda FDTD pozwala na uzyskanie pełnych rozwiązań rozkładu pola, nie oferuje ona bezpośredniego wglądu w multipolową naturę oddziaływań światła z materią. Aby to umożliwić, zastosowano program **MENP** – narzędzie analityczne oparte na środowisku MATLAB. Pozwala ono na rozkład całkowitego rozproszenia na składowe multipolowe, takie jak dipole elektryczne i magnetyczne, kwadrupole oraz wyrazy wyższych rzędów. Integracja programu MENP z symulacjami FDTD ułatwia szczegółowe badanie oddziaływań multipolowych. Przeprowadzenie dekompozycji jest niezbędne ze względu na dużą złożoność obliczeniową hiperbolicznych nanosferoid oraz potrzebę precyzyjnej analizy rozkładu pól.

Metoda macierzy przejścia (T-matrix) Metoda macierzy przejścia stanowi zaawansowane narzędzie obliczeniowe do rozwiązywania problemów rozpraszania fal elektromagnetycznych. Jej podstawową zasadą jest charakterystyka sposobu, w jaki obiekt rozprasza falę padającą, poprzez ustalenie liniowej zależności między współczynnikami rozwinięcia pola padającego i rozproszonego w bazie wektorowych sferycznych funkcji falowych (VSWF). Główną zaletą tej metody jest fakt, że macierz przejścia (macierz T) zależy wyłącznie od właściwości fizycznych obiektu rozpraszającego, takich jak rozmiar, kształt, współczynnik załamania i orientacja. Po wyznaczeniu macierzy dla danej cząstki, można ją efektywnie wykorzystać do obliczenia rozpraszania dla dowolnego kierunku padania fali lub jej polaryzacji.

Wyniki

Niniejsza rozprawa obejmuje trzy etapy badań nad zjawiskami optycznymi w jednoosiowych hiperbolicznych nanosferoidach wielowarstwowych. **W pierwszym etapie** analiza struktur srebro-krzemionka wykazała, że odpowiedź optyczna i sprzężenie modów (ED-MQ oraz MD-EQ) ściśle zależą od kształtu; geometrie wydłużone i sferyczne oferują znacznie lepsze właściwości niż spłaszczone. **Drugi etap** skupia się na samohybrydującym się silnym sprzężeniu z ekscytonami umieszczonymi w matrycy dielektrycznej. Wykazano, że nanocząstki wydłużone i sferyczne pozwalają na uzyskanie dużego rozszczepienia Rabiego oraz silnego sprzężenia modów MD i ED z przejściami ekscytonowymi. **W trzecim etapie** oceniono praktyczną realizację tych zjawisk z wykorzystaniem materiałów TMDC (MoS_2 , MoSe_2 , WS_2 , WSe_2). Rozwiązano problem rozstrojenia widmowego w układach dwuskładnikowych poprzez wprowadzenie trójwarstwowej struktury srebro/krzemionka/TMDC, co umożliwiło osiągnięcie silnego sprzężenia dla dipola magnetycznego i elektrycznego. Praca dostarcza kluczowej wiedzy

o wpływie geometrii i struktury na kontrolę silnego sprzężenia w nowoczesnych urządzeniach optoelektronicznych.

Statystyka

Praca liczy 116 stron;

Składa się z 10 rozdziałów

Bibliografia zawiera 161 pozycji

Lista publikacji Autora zawiera 4 pozycje

1. Arumona, A. E., Czajkowski, K. M., Antosiewicz, T. J. (2023). Material- and shape dependent optical modes of hyperbolic spheroidal nanoresonators. Optics Express 31 (14), 23459. <https://doi.org/10.1364/oe.494389>
2. Arumona, A. E., Antosiewicz, T. J. (2025). Self-hybridized strong coupling of optical modes to excitons in hyperbolic nanoresonators. Optics Express 33 (16), 34537. <https://doi.org/10.1364/OE.569875>
3. Arumona, A. E., Antosiewicz, T. J. (2025). Self-Hybridized Strong Coupling of MD Mode to Exciton in Uniaxial Hyperbolic Multilayer Nanospheroids. In manuscript. Other Published Paper (Not Part of the Dissertation):
4. Arumona, A. E., Johnson, A. (2024). Prediction of optical properties of uniaxial hyperbolic nanospheres via artificial neural networks. Physica Scripta, 99 (11). <https://doi.org/10.1088/1402-4896/ad7fa2>

Uwagi i pytania do dyskusji

A. Anizotropia geometryczna a oddziaływanie światło-materia

W jakim stopniu rozszczepienie geometryczne modów TE i TM wpływa na uzyskane widma? Biorąc pod uwagę, że metody numeryczne z definicji uwzględniają kształt obiektu, niezbędne jest wyraźne rozróżnienie między efektami strukturalnymi a zjawiskami kwantowo-optycznymi. Ponieważ odstępstwa od sferyczności mogą powodować rozszczepienia widmowe fenomenologicznie przypominające oscylacje Rabiego, w jaki sposób można odróżnić czystą anizotropię geometryczną od rzeczywistego sprzężenia światła z materią w interpretacji wyników?

Rozszczepienie geometryczne i rozróżnienie pomiędzy jego wpływem a wpływem oscylacji Rabiego nie zostało szerzej omówione w pracy.

B. Zastosowanie silnego sprzężenia w obliczeniach numerycznych

Czy Autor mógłby wyjaśnić, w jaki sposób reżim silnego sprzężenia jest jawnie wprowadzany do modelowania numerycznego? W szczególności, jakie parametry fizyczne lub wartości progowe (np. stosunek siły oscylatora do szybkości tłumienia) służą jako kryteria definiowania reżimu 'silnego' w kontekście przedstawionych obliczeń?

C. Precyzja terminologiczna: Próżniowe rozszczepienie Rabiego

W rozprawie często pojawia się termin 'próżniowe rozszczepienie Rabiego' (Vacuum Rabi Splitting). Jednak w analizowanym układzie wpływ fluktuacji próżni wydaje się pomijalny w porównaniu ze zbiorowymi oscylacjami Rabiego całego układu. Czy autor mógłby uzasadnić wybór tej konkretnej terminologii w miejsce bardziej precyzyjnych określeń, takich jak 'rozszczepienie modów normalnych' (Normal Mode Splitting) lub 'silne sprzężenie ekscyton-polariton'?

D. Rozkład pola a warunki brzegowe (Rysunek 2.1)

Rysunek 2.1, ilustrujący oddziaływanie padającego pola elektromagnetycznego z wielowarstwowym nano-obiektem: w jaki sposób schemat ten uwzględnia złożone warunki brzegowe (relacje ciągłości) charakterystyczne dla takiej struktury? Biorąc pod uwagę skokowe zmiany przenikalności elektrycznej na każdej granicy faz, rozkład pola wewnątrz warstw powinien wykazywać znaczące nieciągłości. Obecny schemat wydaje się nadmiernym uproszczeniem

E. Ilustracja plazmonów powierzchniowych (Rysunek 2.6)

Rysunek 2.6 przedstawia plazmony powierzchniowe jako dwie oddzielone w przestrzeni „chmury”. Wydaje się to niepoprawne. Plasmon powierzchniowy jest obiektem powierzchniowym.

Czy zjawisko to można zilustrować w sposób lepiej oddający powierzchniowy charakter gęstości ładunku?

F. Mając tak wyrafinowane metody obliczeniowe wydaje się, że można by się pokusić o złamanie symetrii geometrycznej badanych nanoobjektów? Na przykład uformować obiekt w formie spirali albo rogalika? Czy to byłoby ciekawe?

Wnioski i ocena końcowa

Przedłożona praca stanowi wartościowe i zaawansowane studium oddziaływania nanocząstek o złożonym składzie i geometrii na właściwości optyczne układu światło-materia. Część merytoryczna została poprzedzona wyczerpującym wstępem, praca jest klarowna i zrozumiała. Poszczególne jej części zostały opublikowane w recenzowanych artykułach

Podniesione przeze mnie uwagi (punkty A-E) mają charakter dyskusji naukowej, koncentrującej się głównie na precyzji nomenklaturowej oraz sposobie interpretacji i wizualizacji zjawisk fizycznych. Nie podważają one jednak wysokiej wartości przeprowadzonych studiów numerycznych ani rzetelności uzyskanych wyników.

Uważam, że rozprawa w pełni spełnia wymogi stawiane pracom doktorskim i wnoszę o dopuszczenie Autora do dalszych etapów przewodu doktorskiego”.

Warszawa, styczen 2026

A handwritten signature in black ink, reading "Maciej Kolasa". The signature is written in a cursive, flowing style with a long horizontal stroke at the end.