

Warszawa, 31 grudnia 2007 roku.

Prof. dr hab. Tadeusz Stacewicz
Instytut Fizyki Doświadczalnej
Wydział Fizyki
Uniwersytetu Warszawskiego

Recenzja rozprawy doktorskiej Gennadiy Derkachov'a
„Badanie rozpraszanie światła na pojedynczych mikrokroplach
zawierających inkluzje”.

Poznanie własności aerozoli należy do wyzwań współczesnej nauki. Aerozole, szczególnie te w atmosferze, odgrywają znaczącą rolę. Wpływają na klimat, kształtują lokalne własności środowiska, w sposób mało poznany oddziałują na organizmy żywe... - można tu wymienić długą listę znaczących zjawisk zachodzących z ich udziałem. Droga do zrozumienia własności aerozoli wymaga poznania fizyki ich pojedynczych cząstek.

Jednym z procesów, poprzez które aerozole wpływają na atmosferę, jest rozpraszanie promieniowania słonecznego i rozpraszanie długofalowego promieniowania powierzchni Ziemi – tzw. *wymuszenie radiacyjne*. Wiedza na temat rozpraszania światła przez pojedyncze cząstki aerozolu jest daleka od kompletności, a badania tego rodzaju należą do nowoczesnych trendów naukowych. Także i dlatego, że studiując rozpraszanie światła na cząstkach aerozolu, można poznać ich własności.

Cząstki aerozoli mają bardzo różnorodny skład i formę. W atmosferze często występują krople wody o średnicy od kilkuset nanometrów do kilkudziesięciu mikrometrów, zawierające niewielkie stałe inkluzje, tzw. jadra kondensacji. Praca doktorska mgr Gennadiy Derkachov'a poświęcona jest badaniu takich właśnie cząstek, wytwarzanych sztucznie, w warunkach laboratoryjnych. Za pomocą rozpraszania światła doktorant studiował własności kropli wody zawierających małe (nanometryczne) kuliste inkluzje krzemionkowe, polistyrenowe lub fulerenowe.

Recenzowana rozprawa zawiera pięć rozdziałów, które poprzedzono wstępem i streszczeniem. W rozdziale pierwszym przedstawiono przybliżenia teoretyczne stosowane do interpretacji wyników doświadczeń. Są to teoria Mie, dotycząca rozpraszania światła na obiektach o sferycznych, a także tzw. teoria Lorenza efektywnego pola, t.j. metoda obliczania efektywnego współczynnika załamania dla jednorodnej mieszaniny z inkluzjami, z której

wytwarzano krople. Używano też równań opisujących ewolucję parującej kropli – opis ten został dobrze sprawdzony w wieloletnich doświadczeniach wykonywanych przez zespół prof. Macieja Kolwasa, promotora pracy. Opracowano także model dynamiki inkluzji w kropli, rozwiązując równania ich ruchu w warunkach lepkich, przy założeniu, że poszczególne kulki oddziałują za pomocą potencjału Lenarda - Jonesa. W modelu uwzględniono napięcie powierzchniowe działające na inkluzje.

W rozdziale trzecim (rozdział drugi jest krótkim wstępem do części doświadczalnej pracy) opisano układ doświadczalny i metodę badań dla kropli zawierających duże stężenia inkluzji w wodzie. Krople wstrzykiwane były do pułapki Paula umieszczonej w komorze klimatycznej ze sztuczną atmosferą, dobrze kontrolowaną pod względem temperatury i wilgotności. Dzięki ładunkowi, jakie cząstki posiadają, możliwe było zawieszanie ich pojedynczo w pułapce Paula i obserwacja ich ewolucji. W tym celu pułapkę prześwietlano wiązką laserową i obserwowano obraz kropli w świetle rozproszonym dla polaryzacji zgodnej z polaryzacją światła lasera i dla polaryzacji prostopadłej. Dokonywano rejestracji za pomocą kamery i magnetowidu, a następnie, tak uzyskany film klatka po klatce poddawano analizie. Obrazy te, tworzące interferogramy, analizowano posługując się metodą biblioteczną i analizą fourierowską. Porównanie tych wyników z rezultatami teorii Mie pozwalało wyznaczać zmiany promienia kropli w czasie rzeczywistym. Wykorzystano tutaj fakt, że promieniowanie rozpraszając się na dużych obiektach (porównywalnych z długością jego fali lub większych) daje minima interferencyjne, których liczba jest tym większa, im większy jest promień kropli.

Do zalet pracy należy wykazanie, że autor ma świadomość z ograniczonego zakresu, w jakim wolno mu stosować przybliżenie rozpraszania teorią Mie. Teoria ta dla obiektów sferycznych nie przewiduje depolaryzacji światła, poza przypadkiem rozpraszania wielokrotnego. W cząstce z inkluzjami rozpraszanie wielokrotne może nastąpić na wielu inkluzjach wewnątrz kropli, gdy rozkład inkluzji nie jest jednorodny, a po za tym, gdy wskutek parowania kropla tak maleje, że składa się przede wszystkim z inkluzji i traci kulisty kształt. Analizując depolaryzację światła rozproszonego przez krople można więc uzyskać informację o jej kształcie i symetrii rozkładu inkluzji.

Wynikiem doświadczenia opisanego w tym rozdziale jest określenie efektywnego współczynnika złamania kropli, tzn. współczynnika, jaki wynika z teorii Mie. Dla niewielkich oraz dla bardzo dużych promieni kropli wynik ten jest zgodny z prostym wagowym wzorem obliczania współczynnika złamania mieszaniny. Jednak, dla kropli z inkluzjami o promieniach rzędu kilku mikronów, obserwuje się wzrost efektywnego współczynnika

złamania, gdyż zachodzi wzrost rozpraszania ¹⁾). Autor sugeruje, że jest to wynik tworzenia się zamkniętych przestrzeni (wnęk) przez przypadkowo rozmieszczone inkluzje. We wnękach tych występują rezonanse. W celu poparcia tej tezy autor zademonstrował rozwiązania dynamiki ruchu inkluzji i obrazy tworzenia się tych wnęk.

Uważam, teza ta, choć całkiem sensowna, została w pracy słabo udowodniona. Sugestię tę poparto tylko dwuwymiarowym modelem - jak pisze autor – *zachowania się inkluzji wewnątrz kropli*, a to nie wystarczy do opisu rozpraszania zachodzącego w trzech wymiarach. Nie jestem w stanie ocenić, czy model trójwymiarowy dynamiki inkluzji był nieosiągalny dla współczesnych technik komputerowych ²⁾, lecz model płaski nawet nie wyjaśnia zakresu rozmiarów kropli, dla którego pojawia się zwiększone rozpraszanie. Niepoprawne i nieściśle jest tutaj stwierdzenie autora, że rezonanse wystąpią *w chwilach, gdy średnica takiej struktury* ³⁾ *jest wielokrotnością długości fali*, bo po pierwsze, należy mówić o stosunku rozmiarów wnęk do wielokrotności połowy długości fali, a po drugie, przy nieregularnych strukturach trójwymiarowych zależność ta jest znacznie bardziej skomplikowana. Tym niemniej prace nad dobrym wyjaśnieniem zjawiska, z trójwymiarową teorią dynamiki inkluzji w kropli i połączoną z nią teorią rozpraszania światła warto kontynuować, gdyż *albedo* rozpraszania na pojedynczej kropli jest w fizyce aerozoli bardzo cennym parametrem.

W rozdziale czwartym pracy opisano doświadczenia z kroplami o małym stężeniu inkluzji. Wykorzystano tutaj rozpraszanie światła na dwóch długościach fali: 633 nm - do śledzenia zmian promienia kropli, oraz 532 nm – do badania ich optycznych własności.

¹⁾ Czy ewolucja współczynnika załamania przedstawiona na rys. 3.13.1 została uzyskana w wyniku obserwacji ewolucji pojedynczych kropli, czy też jest to wynik obserwacji wielu kropli? Bo skoro wzrost efektywnego współczynnika załamania jest spowodowany przypadkowo powstającymi wnękami, na ile powtarzalne są pokazane tam zależności ?

²⁾ Jak wspomniano, model ten powstał w wyniku rozwiązywania równań ruchu inkluzji w kropli. Obliczenia te dla dużych stężeń inkluzji są niewątpliwie czasochłonne. Wydaje się, że zamieszczone na rys. 3.13.2 wyniki można w stosunkowo krótkim czasie otrzymać, stosując technikę Monte Carlo. Czy w ten sposób da się utworzyć trójwymiarowy model rozpraszania ?

³⁾ Dlaczego *średnica*, skoro wnęka nie ma kulistego kształtu ?

Badania przeprowadzono dla kropli zawierających inkluzje krzemionkowe i polistyrenowe (nie absorbujące światła), oraz inkluzje fulerenowe (o znacznym współczynniku absorpcji).

Stwierdzono, że obecność inkluzji nie absorbujących nie wpływa na szybkość procesu parowania. Natomiast inkluzje absorbujące przyspieszają proces parowania zwiększając temperaturę kropli wskutek pochłaniania energii promieniowania.

Nie zaobserwowano tutaj – jak w poprzednim przypadku - wzrostu rozpraszania dla pewnych promieni cząstek ⁴⁾. Według modelu, gdy parując kropla zmniejsza swój promień, dzięki napięciu powierzchniowemu inkluzje w pewnym momencie układają się w postaci sferycznej powłoki przy jej powierzchni. Te obserwacje potwierdzono badając zależną od czasu depolaryzację promieniowania rozproszonego przez parującą kroplę. Stwierdzono, że w pewnym momencie depolaryzacja osiąga minimum, co można wyjaśnić powstaniem sferycznej powłoki z inkluzji.

Tutaj znowu mam do autora pretensję o niedostateczne wyjaśnienie działania modelu i słaby dowód tezy. Dlaczego ta kulista powłoka nie powoduje powstawania dodatkowych zjawisk rezonansowych w rozpraszaniu, skoro sama tworzy dodatkową wnękę ? Niezbyt też rozumiem, dlaczego przy małych stężeniach inkluzji napięcie powierzchniowe powoduje wychwycenie większości z nich na sferę przypowierzchniową (rys. 4.12.3), natomiast zjawisko to nie zachodzi, gdy stężenie inkluzji jest duże (rys. 3.13.2).

Same studia zmian kształtu mikrokropli w czasie parowania są ciekawe i w powiązaniu ze studiami zmian promienia pozwalają prześledzić jej ewolucję, od kulistej mikrokropli wody do małej niesferycznej struktury składającej się głównie z inkluzji.

W rozdziale piątym przedstawiono współczynniki absorpcji i rozpraszania dla kropli zawierających inkluzje fulerenowe i inkluzje mieszane. Są to cenne wyniki dla wszystkich dyscyplin naukowych powiązanych z fizyką aerozoli. Jednak nie podano tutaj, dla jakiej długości fali obliczono wydajności ekstynkcji. To istotna usterka, gdyż pojawiająca się tam gęsta struktura maksimów i minimów powstaje wskutek interferencji światła, a więc silnie zależy od długości fali.

Dalsze części rozprawy to podsumowanie i dodatki zawierające teorię Mie oraz wzory obliczania przekrojów czynnych na ekstynkcję światła.

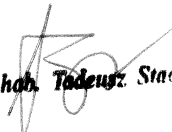
⁴⁾ Czy przedstawione na rys. 4.12.1 – 4.12.2 ewolucje współczynnika załamania kropli w czasie przedstawiają wybrane przypadki ? Czy można było tych zdarzeń zarejestrować więcej i uśrednić wyniki, przekonując czytelnika, że pojawiające się na krzywej minima i maksima są przypadkowymi zdarzeniami, pomijalnymi z punktu widzenia tej rozprawy ?

Pod względem językowym praca jest napisana niezłym stylem, na co warto zwrócić uwagę, gdyż jej autor jest cudzoziemcem. Istnieją jednak w niej zwroty żargonowe, jak np. stwierdzenie *...Inkluzje wewnątrz kropli są podobne do małych grzejników...* (str. 61), które brzmi trywialnie w każdym języku. Podobnie zwroty: *...inkluzje odczuwają...* (str 17) lub *...musimy nauczyć komputer...* (str. 50). Jednak podstawowym błędem językowym pracy jest wręcz sprzeniewierzenie się przez autora zasadom interpunkcji, a w szczególności zasadom stosowania przecinków.

Autor nie ustrzegł się również nieścisłości i błędów redakcyjnych. Np. mówienie o tym (str. 8), że inkluzje o współczynniku załamania $n = 1.45$ (krzemionka) i $n = 1.5$ (polistyren) mają współczynnik załamania zbliżony do wody (dla której $n = 1.28 \div 1.33$) jest trudne do przyjęcia, bo różnica współczynników załamania materiału inkluzji i wody jest porównywalna do różnicy współczynników załamania wody i powietrza.

Jednak rozprawę doktorską mgr Gennadiy Derkachov'a uważam za wartościową i wiele wnoszącą do fizyki pojedynczych cząstek aerozoli. Cząstek, choć wytwarzanych w warunkach laboratoryjnych, zbliżonych własnościami do kropli wody występujących w atmosferze, zawierających inkluzje krzemionkowe, czy też inkluzje absorbujące, np. cząstki węgla. Lepiej rozumiemy procesy rozpraszania światła przez takie cząstki i z tego powodu ta dysertacja jest istotna zarówno dla optyków jak i dla przedstawicieli innych dziedzin, np. dla fizyków atmosfery. Autor zmierzył się z problemem trudnym, wymagającym opanowania nowoczesnych narzędzi laboratoryjnych i komputerowych.

Wymienione powyżej błędy, niedostatki i uchybienia nie zmieniają mojej ogólnej oceny pracy, którą uważam za dobrą i pożyteczną, spełniającą warunki określone w *Ustawie o stopniach naukowych...* itd. Wnioskuje o dopuszczenie tej dysertacji do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

Prof. dr hab.  Tadeusz Staciewicz