

Prof. dr hab. Anna Maciołek
Instytut Chemii Fizycznej
Polskiej Akademii Nauk
ul. Kasprzaka 44/52
01-224 Warszawa

Warszawa, 05 sierpnia 2024

Recenzja rozprawy doktorskiej
mgr Soheila Arbabiego
pt. „Molecular Dynamics Simulation of the Coalescence of Freely Suspended
and Sessile Droplets”,
wykonanej w Instytucie Fizyki Polskiej Akademii Nauk, Dział Fizyki Teoretycznej
pod kierunkiem dr hab. Panagiotisa Theodorakisa
kierownika Grupy Miękkiej Materii i Fizyki Płynów.

Rozprawę doktorską mgr Soheila Arbabiego można zaliczyć do dziedziny fizyki obliczeniowej stosowanej do układów z kategorii miękkiej materii. Przedstawia ona wyniki badań numerycznych dotyczące ważnego i ciekawego procesu fizycznego jakim jest koalescencja kropli cieczy. Proces koalescencji, czyli stapiania kropelek, wzbudza duże zainteresowanie wielu badaczy, ponieważ ma fundamentalne znaczenie dla zrozumienia, między innymi, powstawania kropeł deszczu, spiekania w metalurgii, emulgowania, druku atramentowego, powlekania natryskowego, utylizacji odpadów, a ostatnio mikroprzepływów. Pod względem praktycznego zastosowania w mikroprzepływach, koalescencja kropelek jest istotną procedurą umożliwiającą osiągnięcie pożądaných funkcji opartych na kropelkach, takich jak mikromieszanie i mikroreakcja w urządzeniach „lab-on-a-chip” do testów chemicznych i biologicznych. Pierwsza część niniejszej rozprawy doktorskiej koncentruje się na badaniu koalescencji swobodnie zawieszonych kropelek wody zawierającej cząsteczki surfaktantu, podczas gdy druga część dotyczy kropelek siedzących na podłożu o różnych własnościach zwilżających. Oprócz kropelek wodnych z surfaktantem, w drugiej konfiguracji badane były również kropelki polimerowe. Można zatem śmiało stwierdzić, że tematyka rozprawy doktorskiej jest istotna z punktu widzenia zarówno badań podstawowych jak i zastosowań. Nowatorstwo i wagę uzyskanych wyników potwierdza fakt, że Kandydatowi i współautorom jego artykułów udało się przekonać redaktorów i recenzentów międzynarodowych czasopism naukowych do przyjęcia ich manuskryptów do publikacji.

Rozprawa doktorska Pana Soheila Arbabiego została przygotowana w oparciu o 4 publikacje. Trzy artykuły opublikowane zostały w roku 2023 w czasopismach *Physics of Fluids*, *Soft Matter* i *Macromolecular Theory and Simulations*. Jeden manuskrypt włączony do rozprawy doktorskiej został umieszczony w repozytorium elektronicznym: arXiv (cond-mat.stat-mech) w 2024 roku. Według podanej przez Kandydata informacji, manuskrypt znajduje się obecnie w druku w specjalistycznym czasopiśmie międzynarodowym (*Physics of Fluids*).

Wszystkie opublikowane prace Kandydata ukazały się w międzynarodowych czasopismach z listy filadelfijskiej o dość dużej liczbie punktów MNiSW. Czasopismo *Physics of Fluids* ma wartość współczynnika wpływu (Impact Factor) IF= 4,1 i 100 pkt

MniSW za rok 2024. Soft Matter ma IF = 2,9 za rok 2023 i 100 pkt MniSW za rok 2024. Specjalistyczne czasopismo Macromolecular Theory and Simulations poświęcone nauce o polimerach posiada IF =1,8 za rok 2023 i 70 pkt MniSW za rok 2024. Ilość publikacji wchodzących w skład niniejszej rozprawy jest jak najbardziej zadowalający.

We wszystkich publikacjach będących podstawą rozprawy, Pan mgr Arbabi jest pierwszym autorem, co wskazuje na bardzo duży udział w tworzeniu tych publikacji. Artykuł o kroplach polimerowych, który ukazał się w Macromolecular Theory and Simulations powstał we współpracy jedynie z promotorem. Pozostałe publikacje są we współpracy z jeszcze trzema, poza promotorem, autorami. Zgodnie z zamieszczonymi oświadczeniem do wszystkich artykułów, udział Kandydata, można ocenić na dominujący, z pewnością powyżej 50%.

Dla wszystkich publikacji wchodzących w skład rozprawy doktorskiej, Pan mgr. Arbabi zarówno wykonał obliczenia numeryczne, przygotował i przeanalizował wyniki przedstawione w formie graficznej, wykresów lub tabel, jak i napisał pierwszą wersję artykułu oraz zredagował wszystkie kolejne wersje. Świadczy to o dużym zaangażowaniu autora w proces badawczy. Ponadto, we wszystkich pracach Kandydat brał udział w rozwoju koncepcji badań i metodologii. Wszystko to wskazuje na to, że mgr. Arbabi osiągnął już pewną dojrzałość naukową.

Układ rozprawy doktorskiej Pana mgr. Arbabiego jest zgodny z normami przyjętymi dla tego typu opracowań. Recenzowana rozprawa doktorska składa się ze streszczeń w języku angielskim i polskim i pięciu rozdziałów: krótkiego wstępu poświęconego głównie opisowi motywacji badań podjętych przez Kandydata, rozdziału streszczającego podstawy fizyczne badanych układów, rozdziału dotyczącego metodologii przyjętej do realizacji niniejszej rozprawy doktorskiej, oraz rozdziału, w którym przedstawione są oryginalne wyniki badań (w postaci dopiętych 4 opublikowanych artykułów). Rozprawę dokorską kończą wnioski, perspektywy i bibliografia.

W streszczeniu, w rozdziale 2 oraz w krótkich podsumowaniach najważniejszych wyników poprzedzających dołączone artykuły, Kandydatowi udało się w dość przystępnej a zarazem syntetycznej formie przedstawić całość zagadnienia, naświetlić cele, wykorzystane metody i przebieg badań oraz podkreślić ważność uzyskanych wyników. Wyniki symulacji numerycznych znajdujące się w artykułach i manuskrypcie przedstawione zostały głównie graficznie w formie chwilowych charakterystycznych konfiguracji, a także w formie wykresów i tabel. Cały materiał graficzny został wyraźnie opisany.

Artykuły i manuskrypty są dobrze napisane i starannie przygotowane, jednakże można by sobie życzyć większej staranności w przygotowaniu rozdziału 2, który streszcza istniejące teoretyczne, numeryczne i doświadczalne wyniki dotyczące mechanizmów koalescencji swobodnie zawieszonych i siedzących kropeł, dynamiki wzrostu mostka łączącego dwie krople i mechanizmu transportu masy podczas koalescencji dwóch kropeł. Na przykład, referencje nie odpowiadają kolejności w jakiej są cytowane w tekście, co jest raczej nieprzyjemne z punktu widzenia czytelnika. Można znaleźć parę tzw. literówek, na przykład, we wzorze na termiczną skalę długości, czy w kilku wzorach gdzie pojawia się niezdefiniowany symbol μ zamiast, jak myślę, symbolu η określającego lepkość. Zdarza się, że tekst nie jest samodzielny w tym sensie, że trzeba sięgać do innych źródeł aby go śledzić ze zrozumieniem. Moim zdaniem jest to wada, która utrudnia wykorzystanie prac doktorskich jako źródła szczegółowej, zebranej w jednym miejscu wiedzy. W wielu miejscach, według mojego przekonania, prezentacja jest zbyt zwięzła i mogłaby być przejrzystiej napisana z

podaniem fizycznych intuicji lub rozumowania stojącego za cytowanymi wzorami. Wymienię tutaj tylko kilka przykładów: skąd się bierze charakterystyczna termiczna skala długości, logarytmiczna poprawka do liniowej relacji opisującej ewolucję czasową promienia mostka łączącego krople, czy też prawo potęgowe. Za kompletnie niewystarczający oceniam opis efektu kapilarnego w transporcie masy przy koalescencji kropeł. Na podstawie przedstawionego tekstu trudno jest dobrze ocenić w jakim stopniu Kandydat posiadał ogólną wiedzę teoretyczną ze zjawisk kapilarnych, powierzchniowych i międzyfazowych. Rozdział 3 dotyczący metodologii jest lepiej napisany i jego treść wskazuje na posiadanie przez Kandydata ogólnej wiedzy z zakresu metod symulacji numerycznych do opisu kropelek i ich koalescencji w różnych skalach przestrzennych i czasowych. Pan mgr Arbabi zacytował 97 publikacji (włączywszy swoje własne) w tym 17 prac powstałych w ostatnich 5 latach, co wskazuje na ciągły rozwój tematyki prezentowanej w pracy doktorskiej.

Jednym z głównych celów wytyczonych przez Pana mgr Arbabiego jest wypełnienie luki w wiedzy dotyczącej koalescencji kropelek wody zawierających surfaktant. Istnienie takiej luki - w porównaniu do przypadku kropelek czystej wody - zostało wykazane przez Kandydata w rozdziale 2. Potrzeba użycia metod molekularnej dynamiki aby uzyskać szczegółowy opis transportu masy surfaktantu, szczególnie w fazie początkowej koalescencji a także podczas ewolucji mostka łączącego krople, została przekonująco uzasadniona. Obejmuje ona początkowy etap, gdzie krople stykają się po raz pierwszy. Etap ten jest trudny do uchwycenia w doświadczeniu, a popularne mezoskopowe modele ciągle przestają być adekwatnym opisem dla istotnych w tym stadium skal czasowych i przestrzennych. Jak celnie wskazuje Autor niniejszej rozprawy, symulacje dynamiki molekularnej mogą być również pomocne w rozstrzygnięciu spornych kwestii dotyczących istnienia różnych reżimów wzrostu mostka łączącego krople, które odzwierciedlają odmienne mechanizmy fizyczne.

Drugim głównym celem sformułowanym przez Kandydata jest zastosowanie wielkoskalowych symulacji dynamiki molekularnej do zbadania jak istnienie podłoża na którym osadzone są kropelki zawierające surfaktant i kropelki polimerowe zmieniają scenariusz procesu koalescencji w porównaniu do swobodnie zawieszonych kropelek i w zależności od własności zwilżających podłoża. W przypadku symulacji kropelek polimerowych celem była ocena wpływu lepkości.

Dążąc do osiągnięcia postawionych celów Kandydat rozważał różne metody dynamiki molekularnej sugestywnie uzasadniając w rozdziale 3 wybór użytego w pracy modelu ziarnistego typu góra-dół pól siłowych bazującego na podejściu tzw. SAFT (od angielskiego „The statistical associating fluid theory”) -y Mie. Model ten nie jest nowy, ale jak się domyślam, został on po raz pierwszy użyty, a zatem zaadoptowany do kropelek wodnych z surfaktantem. Na uwagę zasługuje złożoność metody numerycznej i związanych procedur, opanowanie których było niezbędne do zrealizowania postawionych celów naukowych. W Artykule (1) badane są dwa rodzaje surfaktantu typu C_nEm i zakres koncentracji poniżej ale głównie powyżej krytycznej koncentracji dla agregacji. Artykuł (2) stanowi rozszerzenie badań przeprowadzonych w Artykule (1) - uwzględnia dodatkowy surfaktant o odmiennym niż poprzednio typie a także szerszy zakres koncentracji i więcej szczegółów. Autor rozprawy pokazuje, że zarówno mechanizm transportu masy dla surfaktantów jak i struktura przepływów w procesie koalescencji kropelek są w dużym zakresie parametrów uniwersalne i praktycznie nie zależy od typu surfaktantu. Bardzo ciekawym wynikiem jest fakt, że Autor nie zaobserwował wszystkich przewidzianych wcześniej reżimów ewolucji mostka łączącego krople: po początkowym etapie zdominowanym przez fluktuacje

termiczne, mostek powiększa się w czasie według prawa potęgowego z wykładnikiem 0.5 odpowiadającym reżimowi tzw. bezwładności z dynamiką związaną z deformacjami interfejsu zachodzącymi blisko rosnącego mostka. Reżim liniowego wzrostu mostka w czasie związany z lepkością nie jest obserwowany, choć nie wyklucza to jego istnienia. Interesującym, aczkolwiek intuicyjnym wynikiem jest to, że dla dostatecznie dużych stężeń surfaktantów początkowy proces styku kropli w procesie koalescencji jest wynikiem agregacji surfaktantów na powierzchni kropli i cząsteczki wody nie biorą w nim udziału. Artykuły (3) i (4) zawierają w moim przekonaniu bardzo cenne wyniki, gdyż dotyczą tak ważnych dla praktycznych zastosowań, kropli siedzących na podłożu. Kandydat ujawnia, że o ile dla podłoża, które nie podlega zwilżaniu (kąt zwilżania powyżej 90°) proces koalescencji siedzących kropelek z surfaktantem przebiega podobnie jak dla kropelek swobodnie zawieszonych, to podłoże podlegające zwilżaniu znacząco zmienia ten proces ze względu na zwiększony udział cząsteczek wody. Kandydat ujawnia również istotne różnice, szczególnie w szybkości procesu koalescencji dla kropelek polimerowych w porównaniu z kropelkami wodnymi.

Wnioski związane sformułowane przez Kandydata na końcu rozprawy jak i dyskusje zawarte w artykułach pozwalają ocenić najważniejsze osiągnięcie recenzowanej rozprawy doktorskiej. Jest to bez wątpienia przedstawienie kompleksowego opisu procesu koalescencji kropelek na poziomie molekularnym.

W podsumowaniu stwierdzam, że przedstawiona do recenzji praca doktorska Pana mgr Soheila Arbabiego zatytułowana „Molecular Dynamics Simulation of the Coalescence of Freely Suspended and Sessile Droplets” prezentuje ogólną wiedzę teoretyczną kandydata w dyscyplinie fizyki obliczeniowej miękkiej materii oraz umiejętność samodzielnego prowadzenia pracy naukowej.

Przedmiotem rozprawy doktorskiej jest oryginalne rozwiązanie problemu naukowego. W związku z powyższym wnioskuję o dopuszczenie Pana mgr. Soheila Arbabiego do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

Almeida.