

Wpłynęło dnia 19.09.2018
L. dz. 54/WFTiMS/SN/2018
Zał.

Wrocław, 15.09.2018

**Recenzja rozprawy habilitacyjnej dr Jana Franza zatytułowanej
„Teoretyczne metody opisu zderzeń pozytonów z cząsteczkami”**

Dr Jan Franz jest adiunktem na Wydziale Fizyki Technicznej i Matematyki Stosowanej Politechniki Gdańskiej. Studia magisterskie ukończył w 1999r. na Wydziale Matematyki i Nauk Przyrodniczych Uniwersytetu w Bonn. Stopień doktora Nauk Przyrodniczych uzyskał w r. 2003 przedstawiając rozprawę doktorską, wykonaną na tymże wydziale pod kierunkiem prof. Sigrid Peyerimhoff, zatytułowaną „Effektive Hamilton operatoren zur approximativen Berechnung der Elektronenkorrelation in Molekülen”. Praca w zespole prof. Sigrid Peyerimhoff, a także w innych zespołach naukowych na terenie Niemiec oraz liczne staże w renomowanych ośrodkach zagranicznych (Szwecja, Wlk. Brytania, Włochy), przyczyniły się zdefiniowania tematyki pracy badawczej, poszerzenia jej zakresu i nawiązania współpracy z takimi czołowymi postaciami w dziedzinie oddziaływania pozytonów z cząsteczkami gazów jak m.in. profesorowie Gianturco, Karwasz, Tennyson.

Niniejsza rozprawa habilitacyjna powstała na bazie ostatnio prowadzonych prac i poświęcona jest teoretycznym badaniom zderzeń pozytonów z cząsteczkami gazów. Tematyka jest jak najbardziej aktualna. Badania te są ważne zarówno ze względu na liczne zastosowania anihilacji pozytonów w technice i medycynie, jak i – pośrednio – ich wyniki są potrzebne w eksperymentach dotyczących ciał stałych i cieczy. Niestety, niewiele jest prac teoretycznych traktujących całościowo problem rozpraszania pozytonów na układach wieloelektrodowych takich jak cząsteczki atomowe. Jest to zagadnienie na tyle skomplikowane, że na ogół wprowadza się metody przybliżone, pozwalające na badanie zjawisk z różnych stron. Także autor posługuje się takimi metodami, modyfikując je i rozwijając z powodzeniem tak, by uwzględniały jak najwięcej aspektów zjawiska i jednocześnie zapewniały możliwie największą zgodność wyników z eksperymentem.

Dorobek naukowy habilitanta to 31 artykułów opublikowanych w latach 2005-2017, z których 13 wchodzi w skład niniejszej rozprawy. Rozprawa opatrzona jest obszernym komentarzem – autoreferatem – zapewniającym usystematyzowanie poruszonych problemów i obrazowe, choć ogólne, przedstawienie sposobu ich rozwiązania.

Wyniki stanowiące wartość naukową przedstawione w niniejszej rozprawie można oceniać w dwu aspektach:

- wprowadzenia nowych teoretycznych metod badawczych oraz tworzenia i ulepszania odpowiednich kodów numerycznych służących do obliczeń interesujących wielkości fizycznych;

- poszerzenia wiedzy o zjawisku rozpraszania pozytonów na cząsteczkach gazów poprzez zastosowanie wyników prac teoretycznych do badania konkretnych substancji chemicznych i porównanie z danymi eksperymentalnymi.

Uważam, że w pierwszym rzędzie należy docenić prace habilitanta nad uogólnieniem metody macierzy R, znanej w chemii teoretycznej od kilkudziesięciu lat, tak by opisywała ona w sposób pełniejszy rozpraszanie pozytonu na cząsteczkach (prace [H2],[H3], a także [P8],[P9],[P13]). Formalizm ten przeznaczony był pierwotnie wyłącznie do opisu zderzeń elektronów z cząsteczkami gazów i tylko w sposób uproszczony pozwalał na implementację pozytonu (J. Tennyson (1986)). Ogólnie, metoda macierzy R pozwala wykazać pojawienie się stanów związanych pozyton-molekuła. Dr Jan Franz rozbudował tę metodę o możliwość badania wieloatomowych, nie tylko dwuatomowych cząsteczek. Autor rozprawy wprowadził także do funkcji falowych jawną zależność odległości pozytonu od oddziaływującego z nim elektronu. Jest to ważne ze względu na poprawny opis „ostrza” pojawiającego się w funkcji korelacyjnej pary elektron-pozyton. Następną modyfikacją wcześniejszej metody było dołączenie dodatkowego, kwaziciągłego układu funkcji typu Gaussa, co pozwoliło na uzupełnienie funkcji bazy. Zastosowanie gaussianów zamiast funkcji slaterowskich umożliwiło skorzystanie z bardzo wydajnych algorytmów obliczeniowych. Autor przeprowadził odpowiednie testy zaproponowanej implementacji na kwadratowej studni potencjału, dla której wyniki są znane, z pomyślnym wynikiem oraz pokazał dobrą zgodność z obliczeniami innych autorów przeprowadzonymi innymi metodami.

Jedną z możliwości w trakcie rozpraszania nieelastycznego pozytonu jest powstanie stanów wibracyjnych cząsteczek. Dr Jan Franz proponował użycie metody VCC (vibrational close-coupling) (praca [H4]) i – co istotne – wyjście poza przybliżenie Borna. Udało się dzięki temu uzyskać dużą zgodność wyników teoretycznych z eksperymentem.

W pracy [H9] habilitant przedstawił z kolei inną metodę umożliwiającą badanie nie tylko elastycznych procesów rozproszeniowych, ale także procesy jonizacji cząsteczek przez pozyton oraz tworzenia się stanu związanego – pozytu. Metoda ta polega na wprowadzeniu potencjałów zespolonych – absorpcyjnych do zależnego od czasu równania Schrödingera i rozwiązaniu wynikającego stąd układu równań typu Volterra. Użyteczność tej metody wynika z tego, że może być ona łatwo zaimplementowana do istniejących już odpowiednich pakietów obliczeniowych.

Interesujące jest, co habilitant pokazał w pracy [H11], że istnieje korelacja między rozmiarami cząsteczek, a taką odległością pozytonu od centrum, dla której krótkozasięgowy potencjał e-p przechodzi w potencjał typu polaryzacyjnego. Przytoczone przez niego porównania wykazują dużą zgodność wyliczonych przez niego rozmiarów z danymi eksperymentalnymi.

Ważnym wkładem habilitanta w zakresie interpretacji danych doświadczalnych jest podanie analitycznych wyrażeń [H8] pozwalających wyznaczać poprawki kątowe w kolejnych eksperymentach dotyczących rozpraszania pozytonów w gazach. Chodzi tu o pojawianie się systematycznych błędów eksperymentalnych, wynikających z nierozróżniania nierozproszonej wiązki pozytonów od rozproszonej „do przodu”.

Dla potrzeb aktualnych i przyszłych badań teoretycznych dr Jan Franz zaproponował w pracy [H12] użycie różnych potencjałów modelowych, wyprowadzonych na podstawie badań oddziaływania pozytonu z gazem elektronowym, w szczególności metodą QMC. Część dalekozasięgowa tych potencjałów wynika z polaryzacji dipolowej cząsteczki przez pozyton. Odpowiedni dobór tych potencjałów jest bardzo ważny i nawet uważam za właściwe pogłębienie badań w tym zakresie.

Niezależnie od rozwinięcia różnych metod teoretycznych służących opisowi rozpraszania pozytonu na cząsteczkach, istotnym wkładem autora rozprawy jest wykonanie wielu szczegółowych obliczeń różnych parametrów fizycznych dla dużej ilości interesujących materiałów. Obliczenia te były zarazem testami użytych formalizmów. Podstawową wielkością w tej dziedzinie, będącą obiektem zainteresowania eksperymentatorów, jest całkowity i różniczkowy przekrój czynny na rozpraszanie. Habilitant wyznaczył te wielkości różnymi metodami teoretycznymi niemal we wszystkich swoich pracach i to dla różnorodnych cząsteczek, poczynając od tak prostej jak H_2 , skończywszy na bardziej złożonych jak np. CF_4 czy pirimidina. Obliczenia te w dużym stopniu wykazały zbieżność wyników z eksperymentalnymi. Z kolei analiza przekrojów czynnych na rozpraszanie elastyczne z zastosowaniem odpowiednio zmodyfikowanej metody MERT [H10], pozwoliła na uzyskanie informacji na temat długości rozpraszania na poszczególnych cząsteczkach.

Fizycznie interesującym parametrem w tych badaniach jest Z_{eff} – wielkość, którą interpretuje się jako efektywną liczbę elektronów na pozytonie w trakcie anihilacji. Wielkość ta, w zależności od energii rozpraszanego pozytonu, także została wyznaczona przez dr Franza dla wielu cząsteczek. Warto zwrócić uwagę, że dla cząsteczek dwuatomowych (H_2 , O_2 , CO , NO) – do 2006 praca [H1] była jedyną, w której obliczono tę wielkość. Habilitant podjął także próbę znalezienia współczynnika wzmocnienia (prace [P9],[P11]) określającego wielkość zmiany gęstości elektronowej pod wpływem oddziaływania e-p. Wartość tego współczynnika znaleziono na podstawie najlepszego dopasowania krzywej teoretycznej zależności przekrojów czynnych od energii pozytonu do odpowiednich danych eksperymentalnych, co może być użyteczne w badaniach korelacji elektron-pozyton.

Dr Franz podjął się także obliczeń dla cząsteczki wody [P8], trudnej do badań eksperymentalnych ze względu na duży moment dipolowy i dwutlenku węgla [P9]. Ze względu na powszechne występowanie tych cząsteczek, rozproszenia na nich muszą być brane pod uwagę w wielu innych badaniach. Zastosowana tu metoda (macierz R), rozwinięta przez autora, dobrze zdała egzamin.

Habilitant obliczył także parametry rozproszeń pozytonów ma molekułach biologicznych [H5],[H6],[H7],[H8] – ważnych ze względu na badanie DNA, RNA (pirymidyna, tetrahydrofuran, uracil adenina, guanina tymina, cytosina) i wykazujące tautomerię. Okazuje się, że głównym czynnikiem odpowiedzialnym za oddziaływanie e-p w tych związkach jest ich moment dipolowy powodujący, że oddziaływanie to jest dalekozasięgowe i zmienia się jak r^{-2} . Obliczenia wykonano w pierwszym przybliżeniu Borna, ale trzeba brać pod uwagę stopień komplikacji tych związków. Rozpatrywane cząsteczki są duże i mają bardzo niską symetrię. Rozwiązanie równań kwantowo-mechanicznych

wymagało transformacji macierzy rozproszeniowych do innego układu odniesienia oraz znacznego zwiększenia ilości fal parcjalnych niezbędnych do poprawnego opisu zjawiska. Wdrożenie tych modyfikacji wymaga znacznej mocy obliczeniowej, a to z kolei wiąże się z napisaniem odpowiednich kodów numerycznych na komputery pracujące równolegle. Wydaje się jednak, że wysiłek autorów opłaci się w przyszłych badaniach, zarówno eksperymentalnych jak i teoretycznych. Użyteczne może być to, że w publikacji autor przedstawił wyrażenia analityczne na elementy macierzowe oraz różniczkowe i całkowite przekroje czynne. Podobnie, na potrzeby aktualnych i przyszłych badań, w publikacji [H13] habilitant przedstawił projekt bazy danych wartości przekrojów czynnych obliczanych teoretycznie dla różnych biocząsteczek.

Niezależnie od przedstawionych powyżej zalet rozprawy dr Franza mam do niej pewne zastrzeżenia. Już we wstępie brakuje mi wyjaśnienia, dlaczego – poza czysto poznawczym celem – zrozumienie zjawiska anihilacji w gazach jest tak ważne. Przecież tak wielu autorów zajmuje się takimi badaniami. Mam wrażenie, że np. w rozdziale 4 rozprawy, poświęconym badaniom biomolekuł, autor lepiej objaśnił cel badań. Przydałoby się także nieco szersze ujęcie badań nad anihilacją. Nawiązanie we wstępie rozprawy do teorii pól kwantowych i wyrażenie odpowiednich wzorów w języku operatorów polowych pomogłoby spojrzeć na badany problem z ogólniejszej perspektywy. Widziałbym tu też krótkie odniesienie do różnego typu badań eksperymentalnych nad anihilacją pozytonów, dostarczających innych niż przekroje czynne istotnych wielkości fizycznych. Wymienię tu choćby badania poszerzenia Dopplerowskiego spektrum energii kwantów anihilacyjnych. Także powołanie się na osiągnięcia teoretyczne dotyczące anihilacji w materii skondensowanej, z których autor korzysta w dalszej części rozprawy, byłoby wskazane już we wstępie.

Do wyznaczenia przekrojów czynnych na rozpraszanie pozytonu niezbędne jest poznanie charakteru oddziaływań pozytonów mających różne energie z elektronami bombardowanej molekuly. Jednak autor sam nie zagłębia się zbyt w problem korelacji elektron-pozyton, wykorzystuje tu tylko znane wcześniej potencjały i współczynniki wzmocnienia dla sternalizowanego pozytonu. Moim zdaniem wskazane byłoby w przyszłych pracach autora bardziej wnikliwe przyjrzenie się temu problemowi. W omawianej rozprawie jedynie zjawisko polaryzacji molekuly przez pozyton, za którą odpowiada część daleko zasięgowa oddziaływania, rozpatrywane jest bardziej szczegółowo.

Współczynnik wzmocnienia gęstości elektronowej przez pozyton, o którym mowa jest w wielu publikacjach habilitanta (p.np. [H1]), jest w ogólności zależny od pędu układu elektron-pozyton. Z badań dotyczących metali wynika, że zależność ta bywa istotna. Szkoda, że habilitant nie podejmuje dyskusji na ten temat. Poza tym, może warto byłoby się odnieść nawet do dawnych prac dotyczących anihilacji na rdzeniach atomowych jak np. praca Bonderup, Andersen, Lowy, PRB20,883(1979) oraz wielu nowszych i ewentualnie sprawdzić ich przydatność w badaniach autora rozprawy.

Mam też pewne uwagi dotyczące wykorzystywanych w pracach habilitanta wynikach teorii funkcjonałów gęstości. Przybliżenie lokalnej gęstości (LDA) ma ograniczoną

stosowalność w przypadku bardzo szybkich zmian gęstości elektronowej, co wykazano w wielu pracach dotyczących zarówno samych oddziaływań e-e, jak i oddziaływań elektronów z pozytonem. Szkoda, że w rozprawie nie przedyskutowano tego tematu, nie podjęto też żadnych prób skorzystania z poprawek gradientowych do LDA, z powodzeniem stosowanych w odpowiednich obliczeniach teoretycznych ciał stałych.

Oddziałując z elektronami cząsteczki, pozyton zmienia w niej rozkład gęstości elektronowej. Uważam, że przykładowe zobrazowanie takiego zjawiska byłoby przydatne w dalszej jego analizie. Interesująca dla szczegółowych badań jest także postać funkcji korelacyjnej elektron-pozyton $g(|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_p|, \mathbf{r}_p)$. W pracy [H11], w której próbuje się określić rozmiar cząsteczki na podstawie położenia punktu przejścia potencjału korelacyjnego w polaryzacyjny, użyteczny byłby rysunek przedstawiający zależność tych potencjałów od położenia pozytonu. Pozwoliłoby to też na zorientowanie się, jak bardzo ewentualna zmiana formuły, a więc i wielkości potencjału, może wpływać na położenie tego punktu.

Odbiór publikacji przez czytelnika i jej analiza w pewnym stopniu zależą od sposobu przedstawienia wyników. Uważam, że niektóre z rysunków, przedstawiających wykresy zależności przekrojów czynnych na rozpraszanie w zależności od energii wiązki pozytonów (np. w pracy [H12]), powinny być zrealizowane w skali logarytmicznej na osi energii. Pozwoliłoby to na lepszą ocenę zgodności obliczeń teoretycznych z wynikami eksperymentów w zakresie niskich energii.

Wydaje mi się, że publikacja [P13] nie zawarta w autoreferacie powinna być dołączona do zasadniczej części rozprawy. Część ważnych osiągnięć autora znajduje się w tej publikacji. Autor zresztą powołuje się na nią w rozdziale 3.3.

Na koniec: mam liczne zastrzeżenia do polskiej wersji autoreferatu – wiele zdań wydaje się być „żywcem” przetłumaczona z użyciem translatora Google, choć w oczywisty sposób można to usprawiedliwiać faktem, że język polski nie jest językiem ojczystym autora.

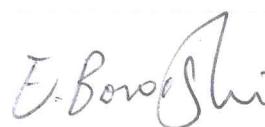
Zamieszczone powyżej uwagi nie mają jednak istotnego wpływu na wartość przedstawionej rozprawy.

Reasumując, dr Jan Franz przeprowadził wielostronne badania teoretyczne rozpraszania pozytonów na różnych cząsteczkach gazów. Wykazał przy tym dużą erudycję w zakresie wykorzystania najnowszych osiągnięć teorii oddziaływań pozytonu z bombardowanymi cząsteczkami, posługiwania się różnymi metodami i technikami fizyki matematycznej, a także dotyczącą bazy osiągnięć eksperymentalnych. Zwłaszcza ten praktyczny aspekt prac habilitanta zasługuje na docenienie. Swoje wyniki teoretyczne autor szeroko konfrontuje z eksperymentem, a jednocześnie dostarcza użyteczne narzędzia dla interpretacji wyników uzyskiwanych w doświadczeniach.

Chciałbym podkreślić też, że w tej dziedzinie teoretycznej końcowe wyniki uzyskać można tylko stosując zaawansowane algorytmy numeryczne i tu dorobek habilitanta, dotyczący połączenia rozwiązań teoretycznych z możliwościami techniki obliczeniowej, jest imponujący. Nawet przeróbki różnych kodów numerycznych przeznaczonych do obliczeń

struktury elektronicznej cząsteczek wymagały wielu godzin pracy, poznania i wprowadzenia nowych algorytmów, łącznie z zastosowaniem metod obliczeń na komputerach pracujących równolegle. Wiele publikacji habilitanta spotkało się z żywym zainteresowaniem wśród fizyków tej dziedziny. Znaczący udział w badaniach naukowych potwierdza ilość jego prac cytowanych przez autorów pochodzących z innych ośrodków, w tym nie tylko teoretyków ale i eksperymentatorów. Do czasu przedstawienia rozprawy prace dr Franza cytowane były ponad 300 razy a te wchodzące w skład rozprawy – 72 razy. W przeglądowej publikacji Brunger *et al* (2017) prace dr Franza cytowane są wielokrotnie (9, w tym 6 wchodzących w skład rozprawy). Szczegółowo, o tym, jak duży jest udział habilitanta w opublikowanych pracach przekonać się można na podstawie oświadczeń współautorów. Kilka prac zostało też opublikowanych samodzielnie, co świadczy o samodzielności badawczej. Publikacje wspólne stanowią świadectwo umiejętności badań zespołowych. Dr Jan Franz potrafił przy tym nawiązać kontakt z wieloma wiodącymi w danej dziedzinie autorami. Poza publikacjami w czasopiśmie, dr Jan Franz wielokrotnie przedstawiał swoje prace w formie wykładów (11) lub prezentacji (32) na konferencjach międzynarodowych oraz krajowych. O uzyskanym autorytecie dr Jana Franza świadczy powierzenie mu kierownictwa w 13 projektach badawczych, członkostwo w kilku komitetach organizacyjnych konferencji naukowych oraz liczne nagrody za wyróżniającą działalność naukową i osiągnięcia dydaktyczne.

Uważam, że dorobek naukowy i rozprawa habilitacyjna dr Jana Franza w pełni spełniają wymogi stawiane kandydatom do stopnia doktora habilitowanego w świetle art. 16 i 18 „Ustawy o stopniach i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki” z dn. 14.10.2003 r. Wnioskuje o dopuszczenie go do dalszych etapów przewodu habilitacyjnego.



Dr hab. Edward Boroński