

Poznań, 6 sierpnia 2015

Recenzja pracy doktorskiej mgra Macieja Majki pt.
Microscopic models for spatially correlated phenomena in soft matter and biomolecular systems

Na tezę doktorską pana Macieja Majki składają się cztery publikacje w dobrych czasopismach (trzy w *Physical Review E* i jedna w *Acta Physica Polonica*) oraz ich obszerne omówienie. Wszystkie cztery publikacje są współautorskie, ale oficjalne oświadczenie współautora i równocześnie promotora, dra hab. Pawła Góry, przypisuje doktorantowi od 85 do 90 procent udziału w uzyskanych wynikach.

W omówieniu przedstawiona jest ogólna metodologia zagadnienia, od problemu przestrzennej samoorganizacji materii biologicznej, poprzez ogólny problem mieszania makromolekuł różnych rodzajów oraz ich efektywnych oddziaływań, do wpływu korelacji przestrzennych w szumie termicznym na dynamikę i strukturę makromolekuł. Poza umiejscowieniem fizycznym swoich wyników, autor przedstawił je również w kontekście dotychczasowych badań. Omówienie napisane jest jasno, niezłą angielszczyzną, i ma reprezentatywny przegląd literatury, wskazujący na dużą erudycję doktoranta w dziedzinie fizyki statystycznej materii miękkiej.

Z metodologicznego punktu widzenia, autor szereguje swoje publikacje od A1 do A4. Czytając prace w kolejności chronologicznej, odniosłem jednak wrażenie, że jego tok rozumowania był inny niż przedstawiony w omówieniu i sprowadzał się do kolejnych uogólnień wyników uzyskanych przez autorów wcześniejszych. W tej też kolejności chciałbym ustosunkować się do przedstawionych mi tez. Wyniki podzieliłbym na dwie grupy.

1. Wpływ korelacji przestrzennych szumu termicznego na dynamikę i strukturę makromolekuł. Punktem wyjścia autora jest standardowy model liniowego polimeru z trzema rodzajami oddziaływań: dwóch harmonicznym bliskozasięgowych, zależnych od odległości między najbliższymi sąsiadami i kątów utworzonych przez najbliższe wiązania, oraz dalekozasięgowych Lennarda-Jonesa uwzględniających wyłączone objętość. Autor realizował symulacje komputerowe dynamiki Langevina dla łańcucha 128 monomerów. Nowością było uwzględnienie korelacji przestrzennych w białym szumie termicznym. Założono dwa rodzaje zależności:

1.a. Szybki eksponencjalny zanik korelacji (prace A2 i A3). Szum charakteryzują dwa parametry: amplituda σ proporcjonalna do temperatury oraz zasięg korelacji λ . Zasadniczny efekt korelacji można krótko zcharakteryzować jako

zwiększenie tendencji do prostowania łańcucha. Przy podwyższaniu temperatury i zwiększaniu zasięgu korelacji objawia się on (1) zastąpieniem dwupikowego rozkładu prawdopodobieństwa wartości kątów przez jednopikowy rozkład zcentrowany na zerze oraz (2) zwiększeniem prawdopodobieństwa znalezienia dłuższych odcinków liniowych. Konformacja łańcucha przestaje być opisywana rozkładem gaussowskim, charakterystycznym dla brownowskiego błędzenia przypadkowego, a obecność stabilnych odcinków prostoliniowych spowalnia dynamikę.

1.b. Wolny zanik korelacji opisywany przez rozkład Cauchy'ego-Lorentza (rozdział III pracy A4). Model został zaproponowany aby zwiększyć efekt prostowania łańcucha i przejścia konformacji polimeru od trajektorii brownowskiego błędzenia przypadkowego, opisanego gaussowskim rozkładem gęstości masy, do trajektorii błędzenia przypadkowego (lotów) Levy'ego, opisanego ogólnym rozkładem α -stabilnym. Również ten szum może być scharakteryzowany przez dwa parametry, temperaturę σ oraz zasięg korelacji λ . Ciekawym wynikiem jest asymptotyczny potęgowy zanik prawdopodobieństwa znalezienia dłuższych odcinków liniowych.

2. Wpływ wewnątrzmolekularnego rozkładu gęstości masy polimerów na ich uporządkowanie przestrzenne. Tutaj punktem wyjścia autora (i jego promotora?) był prawdopodobnie wyraźnie niegaussowski rozkład gęstości masy makromolekuły wynikający z efektu stabilizacji dłuższych odcinków prostoliniowych znalezionego w poprzednich badaniach. Myślę, że ważna była także inspiracja wcześniejszymi pracami zespołów kierowanych przez C. L. Likosa z Duesseldorfu oraz A. A. Louisa z Oxfordu. W tej grupie przedstawione zostały trzy nowe podejścia.

2.a. Wewnątrzmolekularny rozkład gęstości masy (rozdziały III i IV pracy A4). Wychodząc od funkcji rozkładu odległości pomiędzy najbliższymi sąsiadami polimeru liniowego (formuła (8) w pracy A4), doktorant znalazł rozkład gęstości masy w otoczeniu centrum (formuła (15)), a stąd postać potencjału oddziaływań bezpośrednich pomiędzy izolowanymi polimerami (formuła (16)). Obliczenia wraz z odpowiednimi przybliżeniami zostały przeprowadzone dla dowolnych rozkładów α -stabilnych i w przypadku rozkładu gaussowskiego ($\alpha = 2$) uzyskane wyniki zgadzają się ze znanymi z wcześniejszych publikacji.

2.b. Ogólna teoria efektywnych oddziaływań makromolekuł (praca A1). Rozważany był układ składający się z dwóch rodzajów cząsteczek, a poszukiwane było efektywne oddziaływanie cząsteczek pierwszego rodzaju poprzez cząsteczki drugiego rodzaju, statystycznie opisywane wielkim rozkładem kanonicznym. Podstawowym wynikiem jest formuła (5) z pracy A1. Aby ją wyprowadzić, autorzy aproksymowali całą funkcjonalną po polach gęstości rozkładu pośredniczących cząsteczek poprzez odpowiednio dobrane składowe fourieriowskie. Wyprowadzona formuła łatwo rekonstruuje klasyczne wyniki dla ekranowania kulombowskiego oraz efektywnego oddziaływania wynikającego z potencjału Yukawy z twardym

rdzeniem. Co ważniejsze, okazuje się ona bardzo użyteczna w badaniu własności fizycznych mieszanin makromolekuł biologicznych.

2.c. Diagram fazowy dwuskładnikowej mieszaniny makrocząsteczek (rozdział III B pracy A1 oraz praca A4). Ogólną formułę na efektywne oddziaływanie zastosowano do przypadku potencjału gaussowskiego, opisującego oddziaływanie izolowanych polimerów w dobrym rozpuszczalniku powodującym pęcznienie. Sam potencjał gaussowski oddziaływania bezpośredniego został formalnie wyprowadzony zgodnie z metodologią przedstawioną w punkcie 2.a. Potencjał efektywnego oddziaływania pośredniego, wyliczony zgodnie z metodologią przedstawioną w punkcie 2.b, jest również gaussowski, ale z różną wartością wariancji. Analiza znaku oddziaływania sumarycznego prowadzi do spinodalnego diagramu fazowego przejścia faza jednorodna – koagulacja, który jakościowo pokrywa się z diagramem otrzymanym metodami standardowymi w przybliżeniu pola molekularnego. Identyczne rozumowanie zastosowano w ogólnym przypadku α -stabilnego rozkładu gęstości masy i efektywnego oddziaływania makrocząsteczek dwóch rodzajów, również w obecności adsorbującej powierzchni (błony biologicznej). Głównym wynikiem jest diagram fazowy mieszania przedstawiony w Fig. 5 z pracy A4.

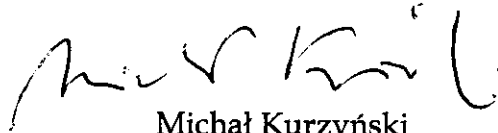
We wszystkich czterech publikacjach problemy przedstawione w punktach 1 i 2 traktowane są jako formalnie niezależne. Ich związek naszkicowany został dopiero w rozdziale 4.2 omówienia (formuła (29)). Myślę, że związek ten wart jest głębszego potraktowania w oddzielnej pracy.

Za najciekawsze wyniki uważam formuły (1) z pracy A1 oraz (27) z pracy A4 ze względu na ich wyjątkową prostotę. Bardzo pogładowe są również Fig. 9 z pracy A2 oraz Fig. 2 z pracy A4.

Uderzających błędów merytorycznych (jak i redakcyjnych) nie zauważyłem. Utrudnieniem w czytaniu pracy jest stosowanie tych samych wskaźników i, j zarówno do numeracji różnych makromolekuł, jak i składowych monomerów w obrębie tej samej makromolekuły. W mojej opinii pozostaje kilka tematów do dyskusji:

- Dlaczego wybór pól rozkładu gęstości cząsteczek pośredniczących dokonany w aproksymacji odpowiedniej całki funkcjonalnej przez składowe fourierowskie można uważać za „teorię zerowego rzędu”?
- Dlaczego oddziaływania bezpośrednie i efektywne mogą mieć taką samą zależność funkcyjną, co prowadzi do jawnie niefizycznego zmiany znaku całości oddziaływań wypadkowych? Czy lepsze przybliżenie może tą sytuację poprawić?
- Jak się ma zmiana znaku oddziaływań wypadkowych do formalnej teorii przejścia fazowego w przybliżeniu pola efektywnego?

Moje pytania nie umniejszają wartości przedstawionej pracy. Wprost przeciwnie, wskazują że ten kierunek badań może mieć dużą przyszłość. W podsumowaniu uważam, że praca mgra Macieja Majki spełnia wszelkie warunki stawiane rozprawom doktorskim przez prawo, wnoszę więc o jej przyjęcie i dopuszczenie Autora do publicznej obrony.

A handwritten signature in black ink, appearing to read 'Michał Kurzyński'.

Michał Kurzyński
Profesor zwyczajny, Wydział Fizyki UAM