

November 29, 2024

Report on Ph. D. Thesis - **"Plasmonic nanostructures supporting frequency conversion in atomic systems"** - by Saeid Izadshenas Jahromi

The Thesis has been prepared in the Institute of Physics, Nicolaus Copernicus University in Toruń, under the supervision of dr hab. Karolina Słowik.

The Thesis is written in English and is composed of two Chapters, Conclusions, Bibliography, and an Appendix containing copies of five papers organised in the order they have appeared in publications. The Thesis investigates the effect of plasmonic nanostructures on some selected nonlinear phenomena arising from the nonlinear light-matter interaction.

The five papers which copies are attached in the Appendix constitute the main research investigations by the Ph. D. Candidate. Four of the papers have already been published in good refereed journals and the fifth paper appears in arXiv. Written statements by the co-authors of the papers and the Candidate explanation of his contribution to the presented research clearly show his major role in the investigations and the performed calculations.

The research topic taken in the Thesis is the study of the influence of a plasmon field formed on the surface of a nanostructure on some selected nonlinear processes occurring in atoms and polar molecules located close to the surface of the nanostructure. The plasmonic nanostructure works as an antenna which amplifies the incident and scattered radiation. Surface plasmons are usually generated on metallic surfaces which work as an antenna enhancing the optical near-field at the surface or interfaces of nanostructures. More precisely, the Thesis investigates the application of plasmonic nanostructures to enhance the interaction of small quantum systems with electromagnetic field, in particular to enhance the nonlinear processes occurring in atoms and polar molecules.

Production of plasmonic nanostructures and their application to generate and enhance linear and nonlinear optical processes is currently the rapidly developing area of physics. It should be pointed out that plasmonic nanostructures have found several useful applications, e.g. lithography, photonics and medical therapy to fight with cancers. Hence, the topic taken in the Thesis is interesting and is in the area of the current great interest of scientists working in different areas of science. From the information provided the Candidate is a co-author of ten scientific papers, among which six have been published in international physics journals of good impact factors and four in conference materials.

The Thesis is organised as follows. The Polish and English abstracts are comprehensively written and clearly explain the concept of the research taken and goals of the Thesis. Next, the Candidate gives a short explanation of the topic of the research and the main results obtained and contained in the attached copies of five Candidate's publications. First Chapter forms an introduction and the second Chapter contains the Candidate's brief explanation of his contribution to the Thesis research. Chapter three contains conclusions followed by Bibliography containing 77 cited papers and books. Final Chapter of the Thesis is Appendix which contains copies of

fife published scientific papers coauthored by the Candidate. The structure of the presented Thesis seems to me not well organised. The detailed explanation presented in the Introduction of the calculations, results and their importance seems to be enough information to judge the quality of the research presented in the Thesis. After such detailed explanation there is no need to study the attached papers and comment on their content, quality and importance.

In the Introduction the Candidate provides a detailed explanation of the properties of plasmonic nanomaterials, history of the development of the research on those materials and methods of creation of different plasmonic nanostructures. For the theoretical investigations taken in the Thesis the Candidate selected as plasmonic structures multi-layer structures and disks composed of silver, gold and graphene. In multilayer structures plasmonic resonance can be easily excited, and the selected noble metals, silver and gold are characterised by small losses and a strong plasmonic response in the visible and near-infrared regimes. The charge concentration in graphene can be controlled and adjusted by electrostatic gating. Next, the Candidate provides an explanation how the basic property of the plasmonic materials, the focused and enhanced surface electromagnetic field can lead to a strong interaction between the plasmonic surface and closely located atoms or polar molecules. The enhanced interaction results in a significant enhancement of the radiation emitted by the atoms, in particular, radiation resulting from nonlinear processes occurring in the atoms and polar molecules. It is also shown how the enhanced density of the modes of the surface electromagnetic field leads to an enhancement of the damping rate of the atom, the effect known in the literature as the Purcell effect. The final section of the Introduction contains a discussion of the mathematical formalism used in the study, in particular numerical methods used by the Candidate in the calculations of the problems.

The results presented in the attached publications present a significant progress in the study and understanding of the influence of plasmons on the selected nonlinear phenomena. In particular, the complete analysis are performed of the influence of the plasmons on the multi-photon absorption. It has been shown that the control of the plasmonic resonance gives the ability to controlled tunable enhancement of different multi-photon absorptions. Interesting are results on the enhancement of the nonlinear processes by plasmons formulated by the integration of silver or gold rods with graphene surfaces which works as a nano-antenna.

A different topic considered by the Candidate is the influence of plasmons on spontaneous emission of atoms and polar molecules. The results obtained show that location of atoms or polar molecules close to the surface of the plasmonic material leads to the enhancement of the spontaneous emission which then results in an enhanced intensity of the emitted radiation. The investigations focused on the enhancement of both Raman scattering and coherent anti-Stokes Raman scattering processes. The interaction with plasmons also leads to a controlled change of the Rabi frequency which allows to control resonances of the spectrum of the emitted radiation.

Finally, returning to my critical comment regarding the structure of the Thesis, I would like to say that in the present form all the information required to judge the quality and importance of the research presented in the Thesis is contained in the

Introduction which is quite long, 32 pages. Therefore, I don't see any reason to read and comment on the research contained in the attached papers. In my opinion the structure of the Thesis would be much better if the attached papers appears as separate chapters each followed by a brief introduction explaining in some details the problem considered. For example, subsections 1.3 and 1.4 could appear as the brief introductions to those chapters.

In summary, despite of the minor critical comment regarding the structure of the Thesis I find that the Thesis makes a significant contribution to our knowledge on the effect of surface plasmons on nonlinear phenomena such as Raman scattering, two- and multi-photon absorption scatterings. The goals of the Thesis have been realised and the presented results published in good refereed journals. Therefore, I recommend the Thesis to be accepted for the award of the Ph. D. degree.

Yours Sincerely,

A handwritten signature in black ink, consisting of a stylized 'Z' followed by a period and a flourish that extends to the right.

Professor Zbigniew Ficek  
Institute of Physics  
The University of Zielona Góra  
Zielona Góra, Poland  
Email: z.ficek@if.uz.zgora.pl

# Recenzja rozprawy doktorskiej zatytułowanej "Plasmonic nanostructures supporting frequency conversion in atomic systems" autorstwa mgr Saeida Izadshenasa Jahromi.

*Niniejszą recenzję wykonano w odpowiedzi na prośbę Rady Dyscypliny Nauki Fizyczne UMK w Toruniu z dn. 18.09.2024 o przygotowanie recenzji rozprawy doktorskiej wraz ze szczegółowym uzasadnieniem czy rozprawa spełnia warunki określone w art. 187 ustawy oraz na podstawie przepisów ustawy "Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce" z dnia 20 lipca 2018 r.*

Rozprawa doktorska mgr Saeida Izadshenasa Jahromi została przygotowana w Instytucie Fizyki Uniwersytetu im Mikołaja Kopernika w Toruniu pod kierunkiem dr hab. Karoliny Słowik.

Rozprawa napisana jest w języku angielskim, składa się z trzech części; obszernego wstępu, dość skromnego podsumowania zagadnień omawianych w dołączonych publikacjach, wniosków końcowych, wykazu bibliograficznego, oraz załącznika zawierającego kopie pięciu artykułów naukowych. Publikacje uporządkowane są według kolejności ich opublikowania w latach 2022-2024 i dotyczą problemu wpływu złożonych plazmonicznych nanostruktur na wybrane zjawiska nieliniowe.

Na zagadnienia przedstawione w rozprawie składa się cykl powiązanych tematycznie pięciu artykułów naukowych, spośród których cztery zostały już opublikowane w bardzo dobrych czasopismach fizycznych, a pozostała umieszczona w systemie arXiv. Oświadczenia współautorów oraz wyjaśnienie Doktoranta o Jego wkładzie do przedstawionych prac wskazują na wiodący udział Doktoranta zarówno w opracowaniu koncepcji badań, jak również w przeprowadzeniu poszczególnych etapów prac.

W rozprawie podjęto tematykę dotyczącą wpływu silnych powierzchniowych pól elektromagnetycznych, tzw. plazmonów powstających na powierzchni nanostruktur warstwowych oraz dyskowych, na wybrane zjawiska nieliniowe w atomach i cząsteczkach polarnych (posiadających stały moment dipolowy) umieszczonych w pobliżu powierzchni takiego materiału, tj. koherentna jak również niekoherentna spektroskopia Ramana oraz procesy absorpcji dwu- i wielofotonowej. Ścisłej mówiąc tematyka rozprawy dotyczy wykorzystania powstających w plazmonicznych strukturach zlokalizowanych rezonansów plazmonów powierzchniowych do wzmocnienia oddziaływania układów kwantowych z polem elektromagnetycznym, w szczególności do wzmocnienia nieliniowych zjawisk optycznych.

Tematyka pracy wpisuje się w obecnie prężnie rozwijającą się technologię wytwarzania materiałów plazmonicznych oraz z tym związany nurt badań nad zastosowaniem materiałów plaz-

monicznych do wzmocnienia lub powstania liniowych oraz nieliniowych zjawisk optycznych. Należy podkreślić, że materiały plazmoneczne znajdują zastosowania w wielu dziedzinach nauki, m.in. w litografii, fotonice czy w terapii leczenia i wykrywania nowotworów; tak więc podjęty w doktoracie temat jest zarówno aktualny, jak i bardzo interesujący. Jak wynika z informacji zawartych w pracy, w chwili jej złożenia Autor był współautorem dziesięciu prac naukowych spośród których sześć zostało opublikowanych w recenzjowanych czasopismach o wysokim poziomie, a pozostałe w materiałach konferencyjnych.

Polsko- i angielskojęzyczne Streszczenie rozprawy napisane zwięźle jest zrozumiałe, przejrzyste i zawiera podstawowe jej tezy. Autor przedstawia cel pracy, uzasadnia znaczenie badań na różnych konfiguracjach plazmonecznych nanomateriałów. Następnie Autor sygnalizuje tematykę badań oraz kluczowe wyniki zawarte w pięciu publikacjach stanowiących właściwą część pracy. Dwa początkowe rozdziały rozprawy stanowią wstęp teoretyczny, zawierają dość obszernie omówienie wyników uzyskanych przez Doktoranta oraz o Jego wkładzie do opublikowanych prac. Kolejny rozdział to posumowanie i dyskusja otrzymanych wyników oraz wykaz bibliograficzny, na który składa się 77 pozycji: książki oraz artykuły naukowe. W formie załącznika dołączone są kopie pięciu artykułów naukowych stanowiących główną część rozprawy. Z tej perspektywy struktura rozprawy doktorskiej wydaje się niezbyt logiczna, wyczerpujące wyjaśnienie we wstępie wyników zawartych w dołączonych artykułach nie wskazuje na konieczność przeprowadzenia szczegółowej analizy zagadnień rozważanych w tych pracach i przedstawienia ich oceny.

We wstępie, który stanowi teoretyczny opis zagadnień ujętych w rozprawie Autor przedstawił zagadnienie fizycznych własności materiałów plazmonecznych, zarys historyczny rozwoju badań nad wytwarzaniem różnego rodzaju materiałów plazmonecznych oraz ich własnościach. W plazmonice stosuje się różnego rodzaju materiały przewodzące oraz dielektryki. Do swoich teoretycznych badań Autor wybrał struktury warstwowe, w których plazmony łatwo ulegają wzbudzeniu, oraz typowe materiały stosowane do tego celu, srebro, złoto oraz grafen. Ponadto, materiały te charakteryzują się najniższymi stratami w zakresie światła widzialnego i podczerwieni. Następnie Autor przechodzi do opisu w jaki sposób podstawowa własność materiałów plazmonecznych, tj. zwiększona gęstość modów powierzchniowego pola elektromagnetycznego powoduje wzmocnienie oddziaływania wielopoziomowych atomów oraz cząsteczek polarnych z polem elektromagnetycznym, co w konsekwencji prowadzi do znacznego wzmocnienia emitowanego promieniowania, a zwłaszcza promieniowania wynikającego z obecności procesów nieliniowych. Pokazuje również jak zwiększona gęstość modów powierzchniowego pola elektromagnetycznego materiału plazmonecznego powoduje wzrost współczynnika tłumienia stanu wzbudzonego atomu w porównaniu do wartości współczynnika w nieobecności nanostruktury, zjawisko znane w literaturze jako efekt Purcella. Rozdział zamyka zwięźle omówienie dostępnych w literaturze metod obliczeniowych, zwłaszcza metod numerycznych, które zostały zas-

tosowane przez Autora do rozwiązywania rozważanych zagadnień.

Powstrzymam się od szczegółowego omawiania zawartości poszczególnych artykułów gdyż obszernie streszczenie tego co jest w nich zawarte oraz znaczenie otrzymanych wyników Autor przedstawił we wstępie do rozprawy. Można na pewno stwierdzić, że w całości prace te stanowią kompletną analizę wpływu plazmonów na wybrane zjawiska nieliniowe. Mianowicie, badany jest wpływ plazmonów na zjawiska dwu- jak również wielo-fotonowe oraz ich własności. Zademonstrowano zaletę stosowania grafenu w plazmonice polegającej na możliwości dostrojenia własności plazmonów grafenowych do kontroli częstotliwości rezonansowych poprzez zastosowanie bramek napięciowych. Pokazano jak ta zdolność pozwala na strojenie wzmocnienia procesów wielofotonowych. Rozważane są również inne struktury warstwowe, np. metal-izolator-metal, która to struktura charakteryzuje się możliwością przestrajania rezonansów, co pozwala na wzmocnienie sygnału detekcji wybranych wartości przesunięć Ramana w cząsteczkach polarnych. Interesujące są wyniki badań wpływu na zjawiska nieliniowe warstw plazmonicznych otrzymanych przez integrację prętów srebrnych i złotych z warstwami grafenu, tzw. nanoanten.

Odrębną tematyką rozważaną w dołączonych artykułach jest wpływ plazmonów na emisję spontaniczną atomów oraz cząsteczek polarnych. Pokazano, że umieszczenie atomów lub cząsteczek blisko powierzchni materiału plazmonicznego prowadzi do wzmocnienia emisji spontanicznej co w konsekwencji prowadzi do wzmocnienia natężenia linii emisyjnych, w szczególności wzmocnienie rozpraszania Ramana. Prowadzi to również do zmiany częstości emitowanego promieniowania poprzez przeskalowanie częstości Rabięgo. Pozwala to na kontrolowanie rezonansów w rozkładzie spektralnym emitowanego promieniowania.

Na zakończenie chciałbym powrócić do komentarza odnośnie struktury rozprawy doktorskiej. W przedstawionej formie czytanie rozprawy doktorskiej właściwie można zakończyć na wstępie. Jak wspomniałem powyżej, wstęp jest bardzo obszerny, 32 strony, zawiera zarówno opis zagadnień ujętych w rozprawie jak również dość dokładny opis tematyki zawartej w poszczególnych dołączonych publikacjach, zawiera wyjaśnienie w jaki sposób zostały przeprowadzone obliczenia oraz przedstawione są wyniki tych obliczeń i ich znaczenie. W ten sposób nie widzę potrzeby przeprowadzenia szczegółowej analizy jakości i wartości wyników dołączonych publikacji. Moim zdaniem struktura rozprawy doktorskiej byłaby bardziej logiczna gdyby dołączone prace stanowiły oddzielne rozdziały rozprawy poprzedzone krótkimi wstępami przedstawiającymi w sposób zwięzły ich zawartości. Przykładowo, podrozdziały 1.3 oraz 1.4 mogłyby śmiało stanowić wstępy do tych rozdziałów.

Mimo krytycznego komentarza odnośnie sposobu prezentacji pozytywnie oceniam wartość przedstawionej rozprawy doktorskiej. Stwierdzam, że cel założony we wstępie rozprawy został zrealizowany. Pokazano w jaki sposób i do jakiego stopnia wielowarstwowe nanostruktury wzmoc-

nią oddziaływanie atomów oraz molekuł z polem elektromagnetycznym. Praca dostarcza informacji w jaki sposób różnego typu materiały plazmoneczne wpływają na nieliniową dynamikę układów fizycznych. Uważam, że recenzowana rozprawa spełnia ustawowe i zwyczajowe wymagania stawiane dysertacjom na stopień doktora. Przedstawione wyniki zostały opublikowane w bardzo dobrych czasopismach. Dlatego z pełnym przekonaniem wnioskuję o dopuszczenie mgr Saeida Izadshenasa Jahromi do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

Prof. dr Zbigniew Ficek  
Instytut Fizyki  
Uniwersytet Zielonogórski  
ul. Szafrana 4a  
65-516 Zielona Góra  
e-mail: z.ficek@if.uz.zgora.pl

Handwritten signature of Z. Ficek, consisting of a stylized 'Z' followed by a period and a flourish.