

Bírálat

Nagy Gábor MTA doktori értekezéséről

Nagy Gábor „Szilárd/folyadék határfelületek elméleti leírása, kísérleti vizsgálata és gyakorlati szerepe” című MTA doktori értekezése igen szerteágazó munka. Mint az értekezés címe is utal rá, a dolgozat folyadékok, általában elektrolit oldatok szilárd fázisokkal alkotott határfelületének tulajdonságait vizsgálja igen sokféle megközelítésben. Ez a sokféleség egyaránt vonatkozik a használt módszerekre és a vizsgált problémákra is. A vizsgálati módszerek palettája a tisztán elméleti megközelítéstől (pl. alagútáram számítása a Schrödinger egyenlet alapján) a különböző számítógépes szimulációs technikákon (molekuláris dinamika, részecskebolyongásos vagy „random walk” szimuláció) át a kísérleti módszerekig (pásztázó alagútmikroszkópia, impedancia spektroszkópia, elektródpotenciál mérések) terjed, míg a végzett kutatómunkában egyaránt megtalálhatóak a tisztán alapkutatási jellegű problémák vizsgálatai (pl. a víz orientációs és hidrogénkötéses szerkezetének vizsgálata hidrofil és hidrofób felületeken), alkalmazott jellegű kutatások (atomreaktorokban fűtőelemek burkolatanyagaként használt fémötvözetek korróziós viselkedésének vizsgálata a reaktorban uralkodó körülmények között), kifejezetten gyakorlati problémák vizsgálata (pl. a Paksi Atomerőmű 2. blokkjában 2003 áprilisában történt üzemzavar következményeinek, így a kiszabadult urán és hasadási termékek kiválásának modellvizsgálata), illetve mérés technikai fejlesztések (pásztázó alagútmikroszkópia alkalmazása felületi folyadékréteg háromdimenziós szerkezetének vizsgálatára, extrém, az atomerőművek primer köreiben uralkodó magas hőmérsékletű viszonyok között is jól működő referenciaelektródok összehasonlító vizsgálata) is. A mai, túlspecializálódott tudományos világban meglehetősen ritka a különféle megközelítési módoknak és különböző jellegű problémáknak ez a fajta egysége egy-egy nagyobb kérdéskör vizsgálatában, és kétségkívül az értekezés egyik legnagyobb erénye ez a fajta sokszínűség, és a sokszínűségből kibontakozó egységes szemléletmód. Mindazonáltal, mint azt a későbbiekben részletesebben is kifejtem, a tárgyalt probléma ezen széles merítése vezet a dolgozat leggyengébb pontjához is.

Az értekezés, mely 32, zömében rangos nemzetközi folyóiratban megjelent publikáción alapul, 128 oldal terjedelmű, ebből a dolgozat törzsét alkotó 2. és 3. fő fejezetek együttes terjedelme közel 100 oldal, amit egy rövid, általános, előszó jellegű bevezetés és az eredmények tézisszerű összefoglalása egészít ki. Az értekezést a használt rövidítéseknek, szerző publikációinak, illetve a felhasznált irodalomnak a jegyzékei teszik teljessé. Az értekezés kiállítása összességében gondos munkát tükröz, az elírások, sajtóhibák száma nem éri el a zavaró szintet. Kellemetlen viszont, hogy több esetben az ábrafeliratok megtörnek két oldal között, vagy teljes egészében az ábrától különböző oldalra kerülnek (pl. 2.2.3.1.2, 2.2.3.2.1 vagy 2.2.4.1. ábra). Hasonlóképpen zavaró a téves vagy hiányos belső hivatkozások szintje. Ilyen egyes esetekben az alsó és felső ábra jobb- és baloldalikén való említése (pl. 2.1.4.2.2. ábra), az ábrán látható görbék téves hivatkozása (pl. a 2.1.5.2. ábra piros görbéi: az ábrafelirat szerint ezek a mért adatok, míg a szöveg szerint a három szénatom fölötti adszorpció helyeken számított eredmények volnának) vagy a hivatkozás hiánya (pl. 2.4.3.2.2. ábra, nem derül ki hogy az üres ill. teli körök melyik mennyiség időfüggését jelölik), a hibás mértékegységek használata (a 2.1.4.2.1. ábra vízszintes tengelyén az egység nyilvánvalóan Angström és nem nanométer), vagy az egyes ábrák, táblázatok ill. fejezetek hibás számozása vagy hibás hivatkozása (pl. a 2.4.2.2. táblázat a dolgozatban használt számozás logikája szerint 2.4.4.1.2 lenne; a 2.1.4.2.1. ábra a szövegben 2.4.2.1-ként, a 2.1.4.2.2. (20. oldal) 4.1.2.2.2.-ként, a 2.4.5.2.1. ábra (72. oldal) 6.5.2.1-ként, míg a 2.4. fejezet 6.-ként (97. oldal) van hivatkozva). E téves hivatkozások nagy száma nyilvánvalóan nem független a dolgozatban használt számozási rendszertől, mely bár logikus, de rendkívül nehézkes és rosszul áttekinthető.

Mint a korábbiakból már kiderült, az értekezés szerkesztése meglehetősen szokatlan, nem követi a hagyományos „Bevezetés-Módszertan-Irodalmi előzmények-Eredmények-Összefoglalás” szerkezetet, ez a struktúra ehelyett az egyes alfejezeteken belül külön-külön valósul meg. Bár én személy szerint szerencsésebbnek tartottam volna a doktori értekezések klasszikus felépítését követni, a téma már említett szerteágazósága és sokrétűsége ezt a szerkezetet is elfogadhatóvá teszi. Feltehetően összefügg ezzel a szokatlan szerkezettel az a tény is, hogy az értekezés a vizsgálatok és eredmények részleteinek ismertetése helyett túl sokszor hivatkozik a munka alapját képező cikkekre.

Véleményem szerint egy ilyen értekezésnek nem csak a háttérét alkotó publikációkkal együtt, hanem önmagában is megálló műnek kellene lennie, azaz tartalmaznia kellene minden, a munkával és az eredményekkel kapcsolatos fontos és releváns részletet.

A munka első fő fejezete négy részre tagolódik. A 2.1. fejezetben a Pt illetve grafit felülettel kontaktusban lévő víz molekuláris szintű szerkezetét, illetve tulajdonságainak hőmérsékletfüggését vizsgálja a szerző számítógépes szimulációs módszerekkel. A 2.2. fejezet az aranyfelületen történő réz előleválás, illetve réz-szulfát réteg kialakulásának pásztázó alagútmikroszkópiás vizsgálatait tárgyalja részletesen, illetve körbejárja az előleválás, adszorpció illetve új fázis kialakulásának folyamatai közötti kapcsolatot, e folyamatok egymásra épülését. A számítógépes szimulációs módszerekhez hasonlóan a szerző az alagútmikroszkópiás mérési technikában való nagyfokú jártasságáról, e technikák elegáns, nagyvonalú és magabiztos tudású alkalmazásának képességéről is tanúbizonyságot tesz. A 2.3. fejezetben a szerző a diffúzióvezérelt fémleválás kinetikáját vizsgálja inhomogén, aktív helyeket tartalmazó felületeken véletlen bolyongásos szimulációkkal. A kapott eredményeket korábbi elméleti modellszámításokkal összevetve kidolgozott egy olyan empirikus egyenletet, mely a megfelelő normálások után alkalmas a kísérleti adatok értelmezésére is. Rövid terjedelme ellenére ezt a fejezetet az értekezés egyik legérdekesebb részének tartom. Az alapkutatási jellegű munkák után a 2.4. fejezet átvezet az alkalmazott kutatások területére, itt az atomreaktorok szerkezeti anyagainak korróziós tulajdonságait, elsősorban egyenletes korrózióját illetve lyukkorrózióját vizsgálja a szerző a reaktorban uralkodó körülmények között, az utóbbi esetben halogenid ionok jelenlétében.

A második, gyakorlati jellegű problémáknak szentelt fő fejezet három alfejezetből áll. A 3.3. fejezet, a 2.4.-hez hasonlóan egy fontos, atomenergetikai motiváltságú alkalmazott kutatómunkát, nevezetesen a primer köri extrém viszonyok között is jól használható referenciaelektrodok vizsgálatát tárgyalja. Ezek a vizsgálatok a korábbiakhoz hasonlóan magas színvonalúak, és alkalmazott kutatási jellegük ellenére a kapott eredmények a vizsgálatokatt eredetileg motiváló problémáktól függetlenül is megállnak a lábukon, tudományos értékük vitathatatlan. Ugyanez nem mondható el a 3.2., és különösen a 3.1. fejezetben ismertetett vizsgálatokról. E fejezetek – noha az ismertetett munkák minősége, a kutatómunka színvonala nem marad el az értekezésben ismertetett

többi munkáétól – véleményem szerint nem illik egy akadémiai doktori értekezésbe, kilóg a dolgozatból, mely egységesebb és jobb lenne e fejezetek nélkül. A vizsgált problémák – a Paksi Atomerőmű 2. blokkjának 2003 áprilisában bekövetkezett üzemzavara következtében a hűtővízkörbe kiszabadult, majd a szerkezeti anyagokon kivált hasadványtermék illetve urán mennyisége, valamint az erőmű egyes blokkjaiban az 1993-2000 közötti időszakban keletkezett mobilis, illetve a zónabeli kazettákon lerakódott korróziós termékek mennyisége – bár kétségtelenül fontosak, esetenként kifejezetten súlyos jelentőségük van, olyan mértékben specifikusak egyetlen adott, konkrét rendszerre, hogy a kapott eredmények mindenfajta általánosításra alkalmatlanok, és így, a vizsgálati módszerek tudományos jellege ellenére, gyakorlati és nem tudományos eredményeknek tekinthetők, és mint ilyenek, nem valóak egy tudományos értekezésbe. Mindezt jól érzékeltetik maguk a tézispontokban ismertetett eredmények: „A Paksi Atomerőmű különböző blokkjainak primer körében az 1993-2000 közötti időszakban [...] a korróziós termékek teljes mennyisége nem haladta meg elemenként és kampányonként a 10 kg-ot”; „[...] az adott időszakban a Paksi Atomerőmű tervszerű üzemeltetése során nem történtek olyan jelenségek, melyek alapján fokozott korróziós termék felhalmozódása lett volna várható.” (IV.1. tézispont), illetve „A Paksi Atomerőmű 2. blokkjának 2003 áprilisában történt üzemzavar során [...] a víztisztítók minimum 4 kg üzemzavari állapotú üzemanyagnak megfelelő anyag kötődött meg a radioaktivitás elszeparálásáig. [...] A szűrők (ioncserélők) az aktív anyag túlnyomó többségét (>99%) megkötötték. Becslésem szerint a 2. blokk aktív zónájában lévő felületeken az első újraindítás után összességében kb. 0,13 g urán volt.”

Összefoglalva, úgy vélem, hogy Nagy Gábor értekezése mind tartalmi, mind pedig formai szempontból eleget tesz az MTA doktora fokozat megszerzésével szemben támasztott követelményeknek. A dolgozat téziseit a IV/1 és IV/2 tézispontok kivételével új tudományos eredményeknek fogadom el. Mindezek alapján az alább ismertetendő kérdéseimre adott válaszoktól függetlenül javaslom az értekezés nyilvános vitára bocsátását, és sikeres védelem esetén az MTA Doktora fokozat odaítélését.

Az értekezéssel kapcsolatban az alábbi kérdéseket teszem fel.

- A határfelületi vízmolekulák orientációját a szerző a molekula dipólusmomentum vektora, valamint az O-H kötés vektora és a felület normálisa által bezárt szög cosinusának eloszlásával jellemzi. Azonban, mivel egy $C_{\infty v}$ -nél alacsonyabb szimmetriájú merev test (pl. a modellbeli vízmolekula) külső térirányhoz viszonyított orientációját két független orientációs változó (például a felület normálvektorának a szög polárkoordinátái egy, a molekulához kötött, lokális koordinátarendszerben) tudja csak leírni, az ilyen molekulák orientációs statisztikájának teljes leírását csak e két változó együttes eloszlása adja meg. Végzett-e a szerző ilyen számításokat, és ha igen, milyen következtetésekre jutott ezek alapján?

- A grafit rétegek közötti víz elrendeződésének vizsgálata során a szerző arra az eredményre jut, hogy ha a két szén felület között a távolság 0.7 nm, akkor a víz egyetlen felhasadt monoréteget, 1.2 nm szeparáció esetén három jól elkülönülő, míg 1.5 nm szeparáció mellett két többé-kevésbé elkülönülő és egy felhasadt réteget alkot a grafit lapok között. 0.9 nm szeparáció mellett azonban két termodinamikailag stabil fázist talált, melyek egyike két tökéletesen elkülönülő molekuláris vízrétegből áll, míg a másik esetben a vízmolekulák gázszerűen, többé-kevésbé egyenletesen töltik ki a két grafit lap közötti teret. Mi lehet az oka e két stabil fázis jelenlétének, illetve a gázszerű fázis hiányának mind kisebb, mind pedig nagyobb szén-szén szeparáció esetén?

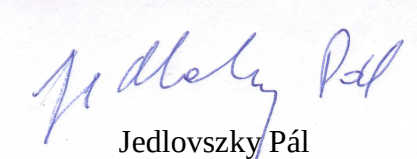
- Molekulák határfelületi tulajdonságaira, így orientációjukra is következtethetünk összegfrekvenciakeltési (nemlineáris) infravörös spektroszkópiai mérésekből. Van-e a szerzőnek tudomása az általa vizsgált rendszerekre vonatkozó ilyen mérésekről, és ha igen, hogyan viszonyulnak e mérések eredményei az általa kapottakhoz?

- Atomreaktorok szerkezeti anyagai egyenletes korróziójának vizsgálatát négy különböző módszerrel (tömegmérés, pásztázó elektronmikroszkópos felvétel, magreakciós analízis, illetve Rutherford visszaszórás) végezte a szerző, az egyes módszerekkel kapott

eredmények egyezése pedig megerősítette a kapott eredmények megbízhatóságát. Kérdés azonban, hogy az egyes módszerek során a használt azonos feltételezések (homogén, egyenletes, sztöchiometrikus összetételű oxidréteg) nem vezetnek-e azonos hibákhoz, mely esetleges hibákat még el is fed az egyes módszerekkel kapott eredmények egyezése.

- A lyukkorróziós vizsgálatok milyen hőmérsékleten történtek? A 2.4.4.2. fejezet elején (64. oldal) 290 °C-t említ a szerző, míg a 2.4.4.2.1. ábra feliratában (65. oldal) 300 °C szerepel.

Budapest, 2011 november 25.



Jedlovsky Pál
az MTA Doktora