

Válasz

Dr. Jedlovsky Pálnak, az MTA Doktorának opponensi bírálatára

Mindenekelőtt szeretném megköszönni Dr. Jedlovszki Pálnak, hogy doktori disszertációról és a hozzá vezető munkáról kedvező véleménnyel van. Nagy öröm olvasni, hogy munkámat sokszínűnek tekinti, és értékeli a sokszínűségből kibontakozó egységes szemléletmódot. Véleménye igazolja, hogy munkámmal szintézist tudtam teremteni több, a tudományos közélet számára fontos témakör között.

Nagyon köszönöm bírálómnak, hogy értekezésemet alaposan áttanulmányozta és számos észrevételt, kérdést tett fel. Bírálóm észrevételeinek egy része a dolgozat szerkesztésével és a sajtóhibákkal kapcsolatos, melyekben igaza van és természetesen elfogadom őket. Az alábbiakban néhány megjegyzésére részleteiben is válaszolok.

Észrevételek:

E téves hivatkozások nagy száma nyilvánvalóan nem független a dolgozatban használt számozási rendszertől, mely bár logikus, de rendkívül nehézkes és rosszul áttekinthető.

A dolgozat szerteágazó volta miatt logikusnak tűnt számomra a fejezetenkénti számozás. Bírálóm megjegyzése alapján azonban úgy találom, hogy a folytonos számozás könnyebben követhető lett volna.

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.

Sajnálatos módon a DSc dolgozatokra érvényes terjedelmi korlátok miatt nem tudtam több részletről beszámolni. Úgy érzem, hogy a munka így is meglehetősen terjedelmes, de talán sikerült az optimális arányt elérnem a részletek és a terjedelem által megadott korlátok között.

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 körüli extrém viszonyok között is jól használható referenciaelektródok 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.

Megértem bírálóm álláspontját és köszönöm, hogy kutatómunkám ezen részét is pozitívan értékeli. A dolgozat megírásakor úgy éreztem, hogy a vitatott részek bemutatják és alátámasztják, hogy létezhet magas színvonalú kutatómunka kifejezetten a gyakorlat számára fontos problémák megoldására is. Nagyon örülök, hogy bírálóm ezt a munkát is magas színvonalúnak tarja és természetesen elfogadom véleményét a dolgozat egységességével kapcsolatban. Mindezt elismerve meg kell azonban jegyezni, hogy megítélésem szerint az

adszorpciós folyamatok elméleti-szimulációs tárgyalása és az adszorpció jelenségkörének a nukleáris iparban jelentkező gyakorlati vizsgálata, ha eltérő módszereket igényeltek is, fogalmi tekintetben föltétlenül rokonságban állnak egymással.

. A dolgozat téziseit a IV/1 és IV/2 tézispontok kivételével új tudományos eredményeknek fogadom el.

Bírálóm szerint a Paksi Atomerőművel kapcsolatos eredményeim nem illenek egy akadémiai doktori értekezésbe. Nagyon sajnálom, hogy nem sikerült jobban érzékeltetnem a tematika összhangját és az eredmények tudományos értékét nem csak az alkalmazott kutatás, de az alapkutatás eredményességét mérő kritériumrendszernek megfelelően is. Én úgy érzem, hogy az említett tézispontokban alapjául szolgáló munka beleillett kutatási tematikámba, illetve az ott összefoglalt eredmények kiváltották a tématerületen dolgozó kutatók érdeklődését. Ezért került be kutatómunkám ezen része is az értekezésbe.

Bírálóm néhány kérdést is feltett munkámmal kapcsolatban, melyek jól tükrözik, hogy alaposan áttanulmányozta munkámat és nagy érdeklődést tanúsít iránta. Kérdéseire az alábbiakban próbálok megfelelő választ adni.

Kérdések:

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?

Mint azt bírálóm kimutatta, az általam használt leírási mód a vízmolekulák orientációjára csak két független változó együttes eloszlásával lehet teljes mértékben leírni. A platina-víz határfelülettel kapcsolatos munkáim során még nem volt tudomásom az általam használt módszer hátrányairól. Erre bírálóm hívta fel a figyelmet a későbbiekben, mikor a grafit-víz határfelülettel foglalkoztam. Ez utóbbi rendszerben végeztem is számításokat kétdimenziós eloszlási függvények meghatározására, ezek publikálására azonban végül nem került sor: A szobahőmérsékletű rendszerekkel kapcsolatos publikációk már korábban elfogadásra kerültek. A magas hőmérsékeltű rendszerekkel kapcsolatban elsősorban a hőmérsékletfüggést kívántuk bemutatni, és a kétdimenziós függvények hőmérsékletfüggése nehezen láttatható. Munkám logikus folytatása lenne ezen a területen a vízmolekulák orientációjának részletesebb vizsgálata, ami – a rendszer szabatosabb leírása mellett – elősegítené, hogy a szimulációk eredményei jobban összehasonlíthatóak legyenek kísérletek eredményeivel.

- 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?

A kétféle, termodinamikailag stabil fázis kialakulásának lehetőségét más szeparációknál is megvizsgáltuk a vizes fázis sűrűségének függvényében. Kis sűrűségű, gázszerű, termodinamikailag stabil fázist azonban csak 0,9 nm grafit szeparáció esetén találtunk. A grafit felületéhez legközelebbi vízréteg esetében adszorpcióról beszélhetünk, azaz a grafit rendezőhatása érvényesül. Az e két vízréteg között elhelyezkedő vízmolekulák orientációját és rendezettségét a rendelkezésre álló tér, a víz sűrűsége, és a hidrogénhidak kialakulásának lehetősége határozza meg. Lényegesen kisebb szén-szén szeparáció esetén nincs hely vízmolekulák jelenlétére. Nagyobb szeparációk és kis sűrűségek esetén a vízmolekuláknak van elég helyük háromdimenziós klaszterek kialakítására hidrogénhidakon keresztül, azaz nem alakul ki a gázszerű fázis.

- 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?

A mérés technika robbanásszerű fejlődésével egyre több in situ módszer vált alkalmassá a határfelületek vizsgálatára. Az optikai módszerek közül ide tartozik a reflexiós infravörös (IR) spektroszkópia, az összegfrekvenciakeltési (SFG) (nemlineáris) spektroszkópia, különbségfrekvenciakeltési (DFG) spektroszkópia és a Raman spektroszkópia. Más módszerek is használatosak, köztük az elektroreflektancia, röntgen- és elektrondiffrakció, illetve röntgen állóhullámok keltése.

Általánosságban elmondható, hogy a mérések megerősítik a Pt-víz határfület szimulációiból kapott eredményeket az adszorbeált vízréteg jelenlétét illetve a vízmolekulák orientációját illetően. A spektroszkópiai munkák közül megemlíteném elsőként Noguchi, Okada és Uosaki méréseit (Electrochimica Acta 53 (2008) 6841–6844) illetve Osawa, Tsushima, Mogami, Samjeské és Yamakata munkáját (J. Phys. Chem. C, 2008, 112 (11), pp 4248–4256) akik a Pt-perklórsavoldat rendszert vizsgálva megmutatták, hogy a vízmolekulák orientációja a kettős rétegben függ az elektród potenciáljától. Hasonló eredményre jutott Kitamura, Ohsaka és Tokuda Journal of Electroanalytical Chemistry 412 (1996) 183–188) illetve Nihonyanagi, Ye, Uosaki, Dreesen, Humbert, Thiry és Peremans (Surface Science 573 (2004) 11–16) is arany elektródot vizsgálva. Elmondható tehát, hogy a kísérletek és a szimulációk eredményei összhangban vannak.

- 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.

Bírálóm felvetése jogos aggodalomnak ad hangot, hiszen az eredmények értelmezéséhez fontos ismerni az oxidréteg sztöchiometriáját. A Rutherford visszaszóráson alapuló vizsgálati módszer nem csak az oxidréteg átlagos tulajdonságairól ad információt, de segítségével meg

lehet határozni az oxigén mennyiségének mélységi eloszlását is. A 2.4.3.3 fejezetben leírt méréseinkből és a szakirodalomban közölt eredményekről arra a következtetésre jutottunk, hogy a minta felületén ZrO_2 összetételű oxid található, míg a fém tömbfázis felé haladva fokozatosan csökken az oxigéntartalom. A többi módszerrel kapott eredmények értékelésénél tehát jó közelítéssel tekinthetjük az oxidréteget cirkónium-dioxidnak.

- 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.

Dolgozatomban nem részleteztem elegendően a mérési körülményeket. Mint arra bírálóm is rámutat, a mérések nem pontosan ugyanazon a hőmérsékleten történtek bár minden esetben 290 °C beállítása volt a cél. Az autoklávós mérőrendszer karakterisztikája és pontossága azonban csak azt tette lehetővé, hogy az elérni kívánt hőmérsékletet csak közelítőleg tudtuk beállítani. Így, a mérések hőmérséklete kis mértékben eltért egymástól, amit minden esetben feljegyeztük. Az eltérések azonban nem befolyásolták lényegesen a reprodukálhatóságot és az összehasonlíthatóságot

Még egyszer szeretném megköszönni bírálómnak a gondos munkát és pozitív véleményét.

Dr. Nagy Gábor