

Opponensi vélemény

Vajda Nóra doktori értekezéséről

A kémia tudományának születésekor, az alkímista előidőkben az anyagok vizsgálatának legfontosabb, ha nem az egyetlen módszere az összetevőkre való bontás volt. Amihez a vegyésznek értenie kellett, az a *scientia separationis*, az elválasztás tudománya. Oldás, hevítés, destruktív desztilláció mind ezt a célt szolgálta. A szervetlen kémia fejlődése természetesen szubtilisabb, igényesebb elveket és módszereket is létrehozott. Míg csak a radioaktivitás felfedezése, a radioaktív elemek azonosítása újra csak meg nem követelte, hogy egyes ásványi anyagokat nagy érzékenységgel (és nagy türelemmel) komponenseikre ne bontsanak. Marie Curie vagy Otto Hahn, hogy a hozzájuk képest csekélyebb érdemű kutatókat ne is említsük, az anyagelválasztásnak voltak a génuszaik.

Ma, ugyancsak megváltozott tudományos és műszaki viszonyok között, változatlanul fontos eszköze az anorganikus kémikusnak és azok között is leginkább talán az analitikusnak az elválasztás. Vannak persze multieleemes módszerek számosan, köztük talán éppen a leggyakoribbak a nukleáris jelenségeken alapulóak, mégis nagyon sok olyan feladattal találkozunk, amelyek a komponensek részbeni vagy teljes elválasztása nélkül nem megoldhatóak.

Vajda Nóra, értekezése címébe a „nehezen mérhető radioizotópok” kifejezést írva, szemmel láthatóan azokra az izotópokra, pontosabban azokra a radioaktív anyagmintákra gondolt, amelyek analitikája megköveteli a komponensek elválasztását. A módszerek fejlesztését általában gyakorlati igények határozták meg, a kérdéseket a nukleáris ipar vagy a környezetvédelem tette fel. Előre kell bocsátanom, hogy ezekre a kérdésekre az értekezésben színvonalas, jól megalapozott, adekvát válaszokat olvashatunk.

A tárgyalt izotópokat azért kell nehezen mérhetőeknek tekinteni, mert vagy nagyon kis áthatolóképeségű sugárzást emittálnak, vagy nagyon hosszú a felezési idejük, vagy rendkívül kis mennyiségben vannak jelen a mintákban. Egyes esetekben ezek a gondok együttesen is jelentkeznek. Jóllehet sugárzó izotóprokról van szó, nem az emittált sugárzás mérése az egyedüli eszköz, amelyet a szerző használ. Gyakran folyamodik tömegspektrometriához, annak ICP változatát alkalmazva, néha aktivációs analitikai eljárást végez, optikai módszerre talán ha egyszer volt szüksége: egy helyen ICP optikai emissziós spektroszkópiáról ír.

Az értekezés fogalmilag egységes ugyan, feladatok szerint azonban meglehetősen széttagolt, ezért helyesnek tekinthetjük, hogy a kutatás irodalmi előzményeit fejezetenként külön-külön foglalja össze.

A rövid, általános Bevezetés áttekinti a „nehezen mérhetőnek” nevezett radioizotópokat és a velük kapcsolatos mérési módszereket. Az 1.1 ábra nagyon hasznosan segítheti a különböző fajlagos aktivitású izotópok mennyiségi meghatározására alkalmas módszerek megválasztását. A fajlagos aktivitás ebben az esetben bizonyára a hordozómentes izotóp preparátumra vonatkozik – ezt azonban a szöveg nem közli. Az ábrát jól egészítik ki a 8. lapon olvasható megjegyzések. Hiányolom azonban, hogy a minták önabszorpciójának a problémája ezen a helyen és később is csak futó megjegyzés formájában szerepel, pedig kis áthatoló képességű sugárzások esetén ennek a kvantitatív tárgyalása igen fontos lehet. A „megfelelően vékony preparátum” kifejezés (7. lap) nem mond sokat. Nagy érdeme viszont ennek a szakasznak, hogy világossá teszi, milyen esetekben van szükség radiokémiai elválasztásokra.

A kutatások általános célját áttekinthetően fogalmazta meg a szerző; látszik, hogy bár az egyes részfeladatok egymástól sokban különböznek, az eljárások módszertani tekintetben egységesnek tekinthetők.

A 2. fejezet a radiostroncium meghatározásáról szól. A szerző által kidolgozott eljárás főként abban tér el az irodalomban olvasható egyik előzménytől, az u.n. C típusú módszertől, hogy foszfát helyett oxalátot használ leválasztásra. Fontosnak kell tekintenünk a ^{89}Sr és ^{90}Sr egymás melletti meghatározását. A kidolgozás alapos, körültekintő munka eredménye, nem világos azonban, hogy az új módszer milyen előnyöket ígér a régebbivel szemben. Hiányolom itt, és ez a hiány az értekezés sok későbbi részében is fennáll, hogy se az eljárás időtartamát, se a módszer költségét nem közli. Két kérdést fel kell még tennem.

- Az egyik lényegtelenebb: mire vonatkozik az ROI (region of interest?) fogalma és mit jelentenek a rövidítés mellett álló számok? Ezek csatornaszámok?
- A 2.1 táblázat a számításokban előforduló mennyiségeket tartalmazza. Szerepelnek itt Nukleáris mérés cím alatt a mért beütésszámok. Miért tekinti ezeket a függvényteni értelemben függő változókat paramétereknek, és – főként – miért tulajdonít nekik egy-egy jól meghatározott számértéket?

A következő fejezet célja nagyon hasznosnak ígérkezik, a feladat megfogalmazása világos: ^{210}Pb és ^{210}Po együttes meghatározásáról van szó. A kísérleti terv alapos, átgondolt. Egyedül ennek az eljárásnak a kidolgozása során alkalmaz a szerző optikai módszert, ICP-optikai emissziós spektroszkópiát (ICP-OES). A végső eljárásban azonban α -spektroszkópiát és folyadék szcintillációs számlálást használ. Az-e ennek a váltásnak az oka, hogy az ICP-OES berendezések nehezebben hozzáférhetőek vagy van a radioaktív számlálásnak valami további előnye az optikai módszerrel szemben? A 3.2 táblázat szerint a mért minták aktivitása 0,1 és 1 Bq közé esik. Milyen hosszú számlálási időket kellett itt alkalmazni? Ilyen természetű

információt, egy eset kivételével, a későbbi fejezetekben se lehet olvasnunk. A NAÜ keretében végzett nemzetközi összemérés során sikeresen validálták a módszert. Az összefoglalásból világosan kitetszik a kidolgozott eljárás újdonsága, felismerhetők jelentős előnyei.

Az értekezés legterjedelmesebb és talán legigényesebb része aktinidák együttes meghatározásáról szól. Az irodalom áttekintése során a szerző erősen hangsúlyozza a komplex vegyületek és az eltérő oxidációs állapotok szerepét az elválasztásokban. Láthatóan nagyon tájékozott, jól ismeri munkája előzményeit, az olvasót azonban nem igazán informálja a szabványok azonosítója és pusztá címe. A kitűzött cél nagyon becsvágyó: hat aktinidát kíván egymás mellett meghatározni extrakciós kromatográfia segítségével, az addigiaknál gyorsabban és egyszerűbben anélkül, hogy a pontosság és a megbízhatóság sérülne. Az eredmények ismeretében meg kell állapítanunk, hogy a disszerens sikerrel érte el ezt a célt. Az UTEVA gyantára kifejlesztett, viszonylag egyszerű eljárás négy aktinida elválasztását teszi lehetővé: ezt az eluáló oldószerek összetételének és az elválasztandó ionok oxidációs állapotának körültekintő és tervszerű változtatásával sikerült elérnie. A 4.3 táblázat (51. lap) adatai szerint a módszer hibája jóval kisebb, mint a referencia méréseké. A módszert a szerző kiterjesztette Zr elválasztására is, itt már az aktinidák esetében használt α -spektrometriát a ^{95}Zr tömegspektrometriás meghatározásával kellett kiegészítenie. Az eljárást igen körültekintően megvalósított izotóp hígításos módszerrel hitelesítette. Az eljárások gyakorlati feladatokra való alkalmazása során szellemesen kombinált több analitikai módszert. Azt azonban ebben a szakaszban is hiányolnom kell, hogy se az elválasztásnak, se az α -aktivitás mérésének a szükséges időtartamát nem közli. Főleg ez utóbbi, tekintettel az 1-100 mBq nagyságrendű aktivitásokra (64. lap) lenne nagyon informatív.

Nagyon fontos gyakorlati igényt elégítettek ki a 2003. évi paksi üzemzavart követő hűtővíz vizsgálatok. (Feltételezem, hogy a pihentető medence vízeről volt szó – ezt a szöveg nem teszi világossá.) Sajnálom, hogy az ezzel kapcsolatos számításokról csak nagyon keveset olvashattam a 62-63. lapon.

Az Am (Cm) elválasztását TRU gyantán hajtotta végre a szerző. Ebben az esetben is körültekintően változtatta az eluáló oldatok összetételét és szabta meg az elválasztandó ionok oxidációs állapotát. Nem értettem a 65. lap egy mondatát: „...savas közegben a Fe oldható oxalát komplexet képez, ami szűréssel eltávolítható.” Viszont örömmel olvastam a 74. lapon az eljárás teljes időtartamára és az α mérés időigényére vonatkozó információkat.

Az aktinida elemzések alkalmazásai során jól hasznosította a jelölt kiterjedt nemzetközi kapcsolatait, fontos információkat tudott szolgáltatni az atomerőmű számára, nagyon hasznos munkákat végzett a környezetellenőrzés és a biológiai analízis területén is.

A ^{135}Cs radiokémiai elemzése három nehézséget is rejt magában: az izotóp nagyon lágy β sugárzó, felezési ideje nagyon hosszú, a hitelesítéshez pedig standard referencia minta nem hozzáférhető. Ezeken a nehézségeken a szerző tömegspektroszkópia alkalmazásával és az aktivációs analitikában használatos k_0 módszer segítségével lett sikerrel úrrá. A 98. lapon közölt adatok szerint a tömegspektroszkópiai mérésekkel és az aktivációs analitika útján nyert eredmények megnyugtató egyezést mutatnak. A k_0 módszerrel kapcsolatos bonyolult számításokat a 95-97. lapon csak röviden ismerteti a szerző, az olvasót az eredeti publikációhoz utasítja. Azt hiszem pedig, hogy a jobb megértés érdekében itt lett volna a helye a számítások részletesebb leírásának.

Néhány apróbb hiba:

- A 13. és 14. lapon hibásan áll a Sr izotópok tömegszáma.
- A 19. lapon a 2.1 táblázat, a 98. lapon az 5.4 táblázat felirata színekre hivatkozik, de a nyomás (az én példányomban legalább is) fekete-fehér.
- A 33. lap 3.5 a) és b) ábráin a tömegszámok hibásak.

Ezektől eltekintve az értekezés fogalmazása, leírása, külső megjelenése alapos munkáról tanúskodik.

Összefoglalva a fent írtakat, megállapíthatjuk, hogy a szerző a radioizotópok analitikájának területén, egy kísérletileg nehezen kezelhető feladatkörben végzett sok éven keresztül célra orientált, alaposan megtervezett, módszertanilag jól megalapozott, sikeres kutatásokat. A feladatokat általában a gyakorlat változó és változatos igényei tüzték ki, a disszerensnek mégis sikerült a megoldásokat egy egységes fogalmi keretben megtalálnia. Mind a módszerek újdonsága, mind a mérések sikere, az eredmények megbízhatósága és haszna alapján, a tézisekben foglalt megállapításokat új tudományos eredményeknek ismerem el, az eredményeket elegendőnek tartom az MTA doktora cím megszerzéséhez, és az értekezést nyilvános vitára alkalmasnak találom.

Budapest, 2015. január 8.

Schiller Róbert