

B Í R Á L A T

Lagzi István László

„Kémiai csapadékmintázatok kialakulása reakció-diffúzió rendszerekben”

című doktori munkájáról (rövid értekezés)

Lagzi István László, a Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Természettudományi Kar, Fizikai Tanszék docense doktori művet nyújtott be az *MTA doktora* cím elnyerésére. Az MTA Kémiai Tudományok Osztálya doktori követelményrendszerében biztosított lehetőséggel élve, a jelölt a doktori művet rövid értekezés formájában készítette el.

A 39 oldalas doktori *értekezés* a PhD-fokozat megszerzését követő időszakban (2004-óta) készült 30 tudományos közlemény eredményeinek tömör összefoglalása. A munka pontos leírásában és az eredmények önértékelésében rendre hivatkozik a másolatban mellékelt saját közleményekre (összesen kb. 200 oldal). Fontos megjegyezni, hogy ezekből 21-ben levelező szerző, 4-ben első (és részben levelező) szerző és – napjainkban ritkán előforduló módon – egy közleményben pedig egyetlen szerzőként szerepel (Tézisek: (12) hivatkozás, *Langmuir*). Az értekezés rövid formájának választása indokolt: a jelölt kutatási tevékenysége koherens, az új tudományos eredmények a címben megjelölt témakörben egyetlen logikus láncra fűzhetők fel.

Az értekezéshez mellékelt *Tézisek* az új tudományos eredmények rövid összefoglalása. Az irodalmi áttekintést (1. Bevezetés) egy részletesebb tárgyalás követ, melynek – a tartalma szerint – talán szerencsésebb lett volna a „2. Célkitűzés és Eredmények” címet adni. Valahol persze igazat adok a jelöltnek abban, hogy az egyszerűbb címet választotta, hiszen egy hosszú évekig tartó kutatás természetes velejárója az, hogy egy részkérdés sikeres megoldása újabb kutatási célok megfogalmazását eredményezi, s így alakulhat ki a célkitűzések egymásra épülő logikus láncolata. A 3. fejezet az eredmények téziszerű felsorolása 14 tömör tézispontban, következetesen feltüntetve az egyes tézispontokhoz tartozó közleményeket. A dolgozat alapját is jelentő 30 közlemény listáját a 4. fejezet tartalmazza. A tézispontok 6 csoportba vannak rendezve, melyek címe azonos az értekezés 3–8. fejezeteinek címével. Az egyetlen mondatban megfogalmazott tézispontok az elvárásaim szerint túlságosan tömörek, és inkább a kutatási tevékenységre (például „kidolgozása”, „előállítás” stb.) vonatkoznak, mint az eredményekre.

Összességében megállapítom, hogy a rövid értekezés és a tézisek minden tekintetben kielégítik a Kémiai Osztály doktori követelményrendszerében megfogalmazott *menyiségi* és *formai* elvárásokat.

Mielőtt rátérnék az értekezés *tartalmi* részének értékelésére, szeretném megemlíteni, hogy a jelölt munkássága a PhD-fokozat megszerzése (2004) óta jóval szélesebb körű volt, mint ahogyan azt az értekezésben összefoglalt 30 tudományos közlemény alapján gondolnánk. Az MTMT-ben közölt adatok szerint 2004-óta 139 közleményt jelentetett meg. A PhD-fokozat megszerzése előtti időszakot is beszámítva a cikkeinek száma 183, melyek összes független idézettsége 3844, Hirsch-indexe pedig 35. Ezeket az adatokat csak azért idéztem, hogy még jobban alátámasszam azon állításomat, hogy a jelölt munkássága nem csak az értekezés szűk

témakörében (csapadékmintázatok kialakulása reakció-diffúzió rendszerekben), hanem a nemlineáris kémiai dinamika szélesebb témakörében is ismert a hazai és nemzetközi tudományos közösségben. A tudományterület meghatározó és egyben vezető kutatója, amelyet az értekezésben is szereplő több, nemzetközi együttműködésben készült közlemény is igazol.

A „Bevezetés” (1. fejezet) 7 oldal terjedelmű, melyben a szerző – logikus kezdésként – először definiálja a reakció-diffúzió rendszer (továbbiakban RD-rendszer) fogalmát. A definícióban (és később is) számomra ellentmondásos az „anyagfajta” kifejezés alkalmazása a kémiai komponensek (vagy részecskefajták) megkülönböztetésére. A jelölt a RD-rendszerek modern kori kutatásának kezdetét Alan Turing 1952-ben közölt úttörő munkájára vezeti vissza, amely fizikai-kémiai magyarázatot adhat – többek között – például a biológiai alakfejlődésre (morfogenezis). A történeti áttekintésből nagyon hiányolom Hans Meinhardt 1970-es években kezdett munkásságának megemléztetését. A szerző (H.M.) például az „Algorithmic Beauty of Sea Shells” című, 1995-ben megjelent könyvében reakció-diffúzió egyenletekkel modellezi a tengeri kagylók és csigák különleges mintázatának (csíkok, fraktálok, helikospirálok stb.) kialakulását. Ezek a modellek nagyon hasonlóak a jelölt által is használt kétdimenziós RD-modellekhez. Említésük talán ezért is lett volna indokolt. A Bevezetés további alfejezeteiben a jelölt ismerteti a Liesegang-jelenséget, majd bemutatja a periodikus csapadékképződés ismert törvényszerűségeit (távolságtörvény, időtörvény, Mathalon–Packter-törvény és a szélességtörvény). Ezt követően bemutatja a periodikus csapadékképződés kísérleti megvalósításának különböző módszereit, valamint a jelenség leírására leggyakrabban alkalmazott ún. pre- illetve poszt nukleációs matematikai modelleket. A fejezet végén a jelölt részletesen tárgyalja a dolgozatban alkalmazott szolkoagulációs és fázisszeperációs kinetikai modelleket. Ismert, hogy Liesegang 1896-ban közölt cikkét igen hamar, 1897-ben követte Ostwald közleménye, amelyben egy ún. túltelítettségi modellt fogalmazott meg a Liesegang-jelenség kialakulására. A dolgozatban bemutatott modellek közül melyik áll ehhez legközelebb?

Az értekezés 2. fejezetének címe „Motiváció”. Ez szinte szóról szóra megegyezik a Tézisek 2. fejezetével, amelynek címe „Célkitűzés”. A cím és tartalom disszonanciájára vonatkozó korábbi megjegyzésemet nem ismétlem meg. Érdekes viszont elgondolkozni azon, hogy a jelenség felfedezését követő 130 év elteltével, az azóta elvégzett kutatások eredményeinek ismeretében mi lehet az, ami a csapadékmintázatok újabb vizsgálatában reményt keltő és izgalmas lehet egy fiatal kutató számára ahhoz, hogy a PhD-fokozat megszerzése után ebbe a témába bekapcsolódjon. Egyrészt adódik egy egyszerű magyarázat, hogy Lagzi István László tudományos munkatársként csatlakozott Rácz Zoltán akadémikus kutatócsoportjához (ELTE, Elméleti Fizikai Tanszék), ahol ilyen típusú kutatások már korábban is folytak. Ugyanakkor a jelölt, a korábbi tanulmányai alapján (MSc-képzés a Szegedi Tudományegyetem Fizikai Kémiai Tanszékén Nagypál István, Tóth Ágota és Horváth Dezső mentorálásával, PhD-fokozat megszerzése Turányi Tamás témavezetésével az ELTE, Fizikai Kémiai Tanszékén) teljesen felkészült volt a reakciókinetika és a nemlineáris kémiai dinamika teljes eszköztárának (kísérleti módszerek, elmélet és numerikus módszerek) alkalmazására a Liesegang-jelenség újszerű vizsgálatára. Erre nagy esélyt adott a modern számítógépek megjelenése, és az olyan új vizsgálati módszerek (például a pásztázó elektronmikroszkópia) napjainkban már rutinszerű alkalmazása, amelyekre a korábbi

generációknak nem volt lehetősége. A jelölt a következő motivációs célokat fogalmazta meg a kutatás előrehaladtával párhuzamosan:

- A reakció-diffúzió rendszerek felhasználása az anyagtudományban, például csapadékok méretfüggő előállítása diffúzióvezérelt szintézissel.
- A Liesegang-jelenség általánosítása és alkalmazása például aranyrészecskék előállítására.
- A csapadékok makroszkopikus morfológiájának szabályozása a gél anyagának módosításával, a koncentráció, polaritás, hőmérséklet, koagulációs küszöb és elektromos erőtér változtatásával.
- A zaj szerepének tisztázása a helikoidális csapadékmintázatok létrejöttében.
- Csapadékképződés megvalósítása vékony folyadékrétegben (Hele-Shaw-cella alkalmazásával).

Az értekezés 3. fejezete a [T1]-[T5] tézispontokban összefoglalt eredményeket ismerteti, melyekhez a tézisekben felsorolt (1)-(7) közlemények kapcsolódnak. Ebben a fejezetben a jelölt a periodikus csapadékképződést vizsgálja különböző kémiai rendszerekben. A témakörében született számos érdekes eredmény közül egyet emelnék ki, amely különösen felkeltette az érdeklődésemet. Nevezetesen, annak megállapítását, hogy a párolgás sebessége hatással van a csapadékszónák periodicitására. Ez a fázisátmenettel járó folyamatot hogyan szerepel a RD-rendszerek matematikai modelljében?

Az értekezés 4. fejezete a [T6]-[T8] tézispontokban összefoglalt eredményeket ismerteti, melyekhez a tézisekben felsorolt (4), (8)-(10) közlemények kapcsolódnak. Ebben a témakörben talán a legérdekesebb megállapítás a 7. ábrán bemutatott lineáris skálatörvény kísérleti felfedezése ([T7] tézispont). Eszerint a csapadéksávokban képződő részecskék mérete lineárisan növekszik a gélben lévő távolságukkal. Három kérdés merül fel az olvasóban: i) mivel a részecskék alakja sokféle lehet (gömb, kocka stb.), mit tekintünk pontosan egy részecske méretének ill. átlagos méretének? ii) létezik-e elméleti magyarázat erre az új törvényre? iii) a RD-rendszerek matematikai modelljei adnak-e magyarázatot erre az új, kísérletesen felfedezett törvényre?

Az értekezés 5. fejezete a [T9] tézispontban összefoglalt eredményeket ismerteti, melyekhez a tézisekben felsorolt (11)-(18) közlemények kapcsolódnak. Ebben a témakörben a jelölt a csapadékmintázatok vezérléséről számol be mindazon paraméterek változtatásával, amelyeket a motivációk ismertetésekor felsoroltam. A modellszámítások egyik különösen érdekes eredménye annak felismerése volt, hogy az ún. koagulációs küszöb értékét megfelelő függvény szerint csökkentve ekvidisztáns illetve inverz csapadékmintázatot lehet előállítani. Jelentős eredménynek tartom annak modellezését is, hogy milyen hatással van a reakcióedény fala a mintázatképződésre. A modell szerepel a Tézisek (18) sorszámú cikkében. Mivel ez már a sokadik idézett modell, itt érzem időszerűnek megkérdezni: honnan származnak a különböző modellekben szereplő állandók és paraméterek értékei? Van-e ezeknek az értékeknek reális alapja vagy nagyobb szerepe van a próbálgatásnak, illesztéseknek?

Az értekezés 6. fejezete a [T10]-[T11] tézispontokban összefoglalt eredményeket ismerteti, melyekhez a tézisekben felsorolt (19)-(22) közlemények kapcsolódnak. Ebben a

témakörben a jelölt a helikoidális és helikális csapadékmintázatok képződésének kísérleti és elméleti vizsgálatáról számol be. Az egyik legfontosabb új eredmény annak felismerése volt, hogy fluktuációk (zaj) nélkül a modellszámítások csak Liesegang-jelenséget eredményeznek, míg a zaj beépítése lehetővé teszi a helikális mintázatok modellezését. Adódik a kérdés, hogy a kísérletekben mi lehet a fluktuáció forrása, és hogyan változtatható annak amplitúdója?

Az értekezés 7. fejezete a [T12] tézispontban összefoglalt eredményeket ismerteti, melyekhez a tézisekben felsorolt (23) közlemény kapcsolódik. Ez egy nagyon izgalmas fejezet, mert az itt bemutatott eredmények megdöntik azt a több, mint százéves felfogást, hogy a Liesegang-jelenség kizárólag csak porózus, merev közegben (pl. gélben) jöhet létre. A jelölt és társszerzői egy ún. Hele-Shaw-cellában, vékony, vízszintesen orientált folyadékrétegben is csapadékképződést mutattak ki a réz(II)-kromát rendszerben. A kísérletekben azt találták, hogy mind a négy ismert Liesegang-törvény érvényesül ebben az esetben is. Ugyanakkor az ezüst(I)-dikromát esetében csak akkor képződött periodikus csapadékmintázat, ha a folyadékba kis mennyiségű zselatint tettek. Megfigyelték, hogy a mintázatok egyre periodikusabbá váltak a zselatin koncentrációjának növelésével. A kísérletek arra utalnak, hogy a zselatin elősegíti a heterogén gócképződést a zselatin és az ezüstionok közötti komplexképződés révén.

Az értekezés utolsó, 8. fejezete a [T13]-[T14] tézispontokban összefoglalt eredményeket ismerteti, melyekhez a tézisekben felsorolt (24)-(30) közlemények kapcsolódnak. Ennek a fejezetnek a témája nem szerepelt a motivációs célok között. Az itt bemutatott eredmények ugyanis a csapadékmintázatok egy különleges, új viselkedésének megjelenéséről számolnak be. A jelölt és szerzőtársai felfedezték, hogy az alumínium-hidroxid rendszerben nem a megszokott statikus mintázatok, hanem dinamikusan változó struktúrák, ún. „kémiai hullámok” alakulnak ki a csapadékrétegben. A macskakörmet azért használom, mert ezek a mozgó csapadékmintázatok egészen más mechanizmus szerint képződnek, mint a gerjeszthető, homogén kémia rendszerekben (mint például a Belouszov-Zsabotyinszkij-rendszerben) kialakuló kémiai hullámok, és jellegzetesen összetettebb a mozgásuk. Az eltérő mechanizmust támasztja alá az ún. diszperziós függvények jellegzetes eltérése is, amelyről a Tézisek (28) közleményében lehet részletesen olvasni. A szerzők megfigyelése szerint a hullámok terjedése a vékony csapadékrétegben megy végbe, és terjedésük merőleges a diffúziós síkfrontra. A hullámképződést oldalnézetből vizsgálva azt is megállapították, hogy a felülnézetből megfigyelt hullámok nem mások, mint a csapadékeleken mozgó heterogén frontok. A megfigyelt önszerveződési jelenség univerzalitását támasztja alá az a tény, hogy ezeket a dinamikus mintázatokat más két rendszerben (cink(II)-hidroxid és higany(II)-jodid) is megfigyelték. A jelenséget alaposan tanulmányozták, és az eredményeket 7 közleményben ismertették. Az utolsó [T14] tézispont arról szól, hogy a csapadékhullámok szokatlan módon ún. szuperdiffúzióval mozognak. Ez azt jelenti, hogy az $x \sim t^\gamma$ kifejezésben, melyben x a hullámfront pozíciója és t az idő, a γ hatványkitevő értéke 0,5-nél nagyobb. Ez egy különleges eredmény egy olyan rendszerben, amelyben az anyagtranszport csak diffúzióval valósulhat meg.

Az értekezés „Köszönetnyilvánítással” és az értekezésben felhasznált közlemények listájával zárul. A felsorolt 69 közlemény értelemszerűen tartalmazza azt a 30 cikket is, amelyek az értekezés alapját jelentik. Talán könnyebben átlátható lett volna, ha ez a 30 cikk külön listán szerepel.

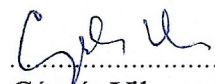
Az értekezés formai kivitelezése példás, az ábrák színvonala kiemelkedően magas. Az ábraalírások részletesek és nagyban segítették a kísérletek és modellszámítások részleteinek, illetve az eredményeknek a megértését, megismerését. Az értekezésben számos modell szerepel. Talán megérte volna a fáradságot egy táblázat szerkesztése, amelyben fel lennének sorolva az egyes jelenségek esetében alkalmazott kémiai és matematikai modellek. Így látható lenne ezek fejlődése, finomítása és belső logikája.

Összeségében megállapítom, hogy a rövid értekezésben részletesen tárgyalt és a tézispontokban tömören összefoglalt kutatások számos új tudományos eredményt tartalmaznak, melyek mind jelentősen hozzájárultak a témakör és a tudományág fejlődéséhez. Különösen fontos ez a jelen esetben, hiszen a mintegy 130 éven át vizsgált Liesegang-jelenségről és a hozzá hasonló csapadékképződési reakciók dinamikájáról van szó.

A 14 tézispont mindegyikét új tudományos eredménynek fogadom el.

A doktori munka tudományos eredményeit messzemenően elegendőnek tartom az MTA doktora cím megszerzéséhez. Javaslom a nyilvános vita kitűzését, és sikeres védelem esetén az MTA doktora cím odaítélését a jelöltnek.

Érd, 2026. október 8.


.....
Gáspár Vilmos (bíráló)