

Válasz

Dr. Bakó Imre "Pórusos rendszerek adszorpció és diffúzió tulajdonságainak vizsgálata klasszikus molekuláris dinamikai szimulációkkal" című PhD dolgozatról írt bírálatára

Nagyon szépen köszönöm a bíráló alapos munkáját. Bírálóm kérdéseire a következő válaszokat adom.

1. Kissé pongyola a dolgozatbeli megfogalmazás, az általános (m,n) típusú alaknál jobb lett volna Mie típusú potenciált írni (bár egyes irodalmak használják ilyen tágabb értelemben is a Lennard Jones potenciált, de szűkebb értelemben Lennard Jones potenciáltól csak akkor van szó, ha $m=12$ és $n=6$).
2. Véleményem szerint a kötésnyújtás és a szögdeformáció kisebb molekulák esetén nem befolyásolja jelentős mértékben a molekula dipólusmomentumának nagyságát, hiszen a klasszikus intramolekuláris potenciálok a kölcsönhatási centrumok helyének számottevő megváltozását általában (és persze valósághűen) nem engedélyezik, és ezáltal a töltésszeparáció mértéke nagyban nem változhat (víz esetén az irodalomban maximum 5%-os változást emlegetnek, de hozzáteszik, hogy a kötéshossz és a kötésszög változásának hatása a dipólusmomentum értékére gyakran éppen ellentétes). Polimer láncmolekulák esetén szóba jöhet komolyabb mértékű alakváltozás (ld. pl. az ún. statisztikus gombolyag elmélete), ám ezeknél a molekuláknál ritkán szokott tipikus jellemző lenni a dipólusmomentum.
3. Amennyiben a rendszerünk ergodikus, akkor a Monte Carlo és molekuladinamikai módszerek azonos makroszkopikus tulajdonságokat adnak. Ha ez nem teljesül, akkor az összezsátolásukkal kapott módszerrel végzett szimulációk során nem a kívánt rendszert fogjuk mintavételezni. Végeredményében rossz makroszkopikus tulajdonságokat, hibás adatokat fogunk mérni a szimulációinkkal. Ilyenkor a probléma tulajdonképpen nem is

a DCV módszerek DMC-hez csatolásával jöhet elő, hanem már önmagában a DMC módszer eredményei is – a dinamikai tulajdonságokra vonatkozóan – megkérdőjeleződhetnek.

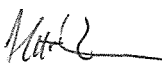
4. A korrekciós tagok kiszámításakor a legegyszerűbb formára törekedtem, de a konvergencia javítása érdekében bevezettem a számított áramsűrűségek szórását tartalmazó 2. tényezőt (ld. a transzport irányában az áramsűrűségek elvben mindenütt ugyanakkorák). Ez azt biztosítja, hogy a szimuláció elején (amikor a szórás nagyobb) nagyobb mértékben tudjuk változtatni a kémiai potenciálokat, és ahogy halad előre a szimuláció (a szórás pedig várhatóan csökken), a változtatás mértéke legyen egyre kisebb. A dolgozatban itt hibásan maradt benne, hogy ez a tényező 1-hez tart, mert valójában maximum 1-től indul, és zérushoz tart.
5. Az x irányú áramlási sebesség egy átlagos érték, ami úgy adódik, hogy a transzportszimuláció során számoljuk a részecskesebességek x irányú (transzportirányú) komponensének átlagos értékét (a driftsebességet). Amikor az időben állandósult rendszer kialakul, akkor ez az átlag a tapasztalatok szerint csak kis hibával terhelt, ezért következetesen levonható a részecskék sebességvektoraiból. A szokásos (bár egyes munkák által vitatott) kezelésmódban az így kapott sebességek adják a hőmérsékletet.
6. Ez az adott szövegkörnyezetben nem egy precíz megfogalmazás, és úgy kell érteni, hogy a szimuláció során az agyagásvány lapjai között az interkalátum molekuláinak fokozott aggregációja következett be. Ez nem átmeneti volt, és a rétegeközi teret nem egyenletesen töltötte ki a keletkezett egy vagy két molekulaklaszter (nagy üres terek jöttek létre). A kristályszerű kifejezéssel arra szerettem volna utalni, hogy ezek a klaszterek hosszú idő alatt is egyben maradtak, úgy, mintha kristálycsírák lettek volna. Ilyen esetekre a kristályszerű kifejezés használata az angol szakirodalomban viszonylag gyakori, de a magyar szaknyelvben ez önmagában talán félreérthető.

Megjegyzendő, hogy ilyen szűk réspórusokban a precíz különbségtétel kristályos és nem kristályos szerkezetek között nehézkes (a kristályos struktúra kialakulásának ellenőrzésére szokásosan alkalmazott Q_6 szerkezeti paraméter használata általában itt nem sikeres).

7. Valószínűleg a kaolinitrétegek különböző parciális töltései miatt rendeződnek így a molekulák. A tetraédes réteg kismértékű negatív töltése okozza, hogy az anionok valamivel nagyobb csúcsot adnak az oktaédes réteghez közelebb. A vízmolekulák pedig szterikus okok miatt részben kiszorulnak onnan (mivel az anionok kiszorítják őket onnan). Az említett eltérések azonban olyan kismértékűek voltak, hogy nem akartam messzemenő következtetéseket levonni belőlük.
8. A sűrűségprofilok első előfordulásánál részletesebben kitérek rá, hogy a vízszintes tengelyen a kaolinitlap tömegközéppontja és a vizsgált interkalált részecske tömegközéppontja között mért távolság szerepel. De valóban, ennek az ábraelírásban is szerepelnie kellett volna.
9. Semmiképpen sem egyensúlyi. Ez az a két réteg, ami közül kiszorulnak az interkalált molekulák és a rétegtávolság visszaesik az üres kaolinit 0,72 nm körüli értékére, ahogy az a 40. ábrán is látható. A szóhasználatot az előbírálatra a bíráló rendelkezésére bocsátott kéziratához képest javítottam, és a dolgozatban most az „időben stabilizálódónak látszik” kifejezést használom (de a félreértések elkerülésére talán szerencsésebb szóhasználattal is élhettem volna).

Végezetül még egyszer szeretném megköszönni a bírálatot és a kérdéseket.

Veszprém 2019. november 19.


Hátó Zoltán

