

Válasz Dr. Jedlovsky Pál egyetemi tanár bírálatára

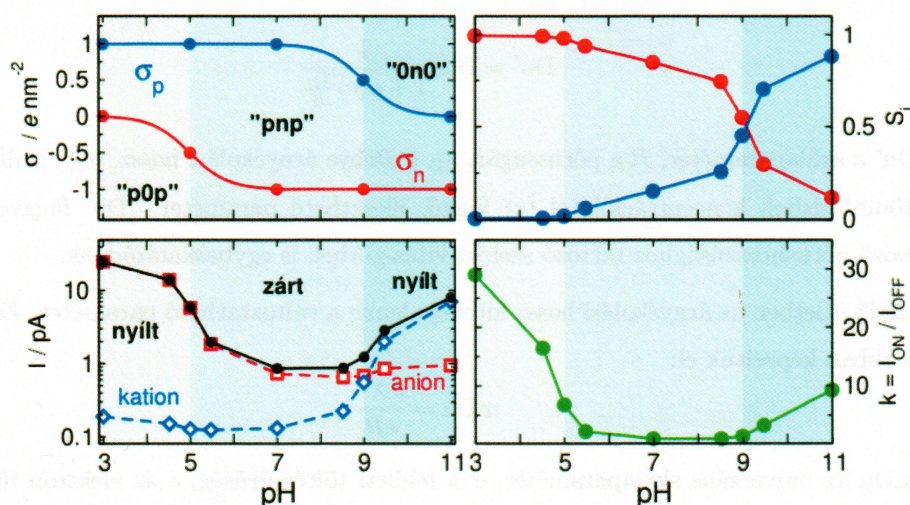
Fertig Dávid

Szeretném megköszönni Dr. Jedlovsky Pál professzor úrnak, hogy vállalta dolgozatom elő- és végleges bírálatát. Külön köszönöm a disszertáció részletes véleményezését és az építő jellegű, hasznos kérdéseit.

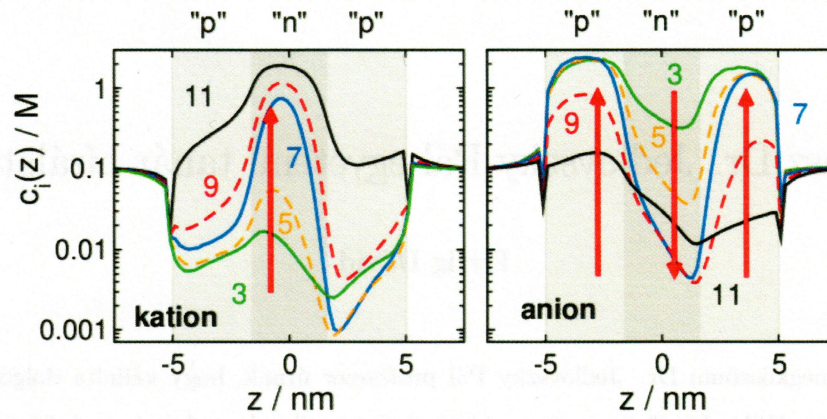
A kérdésekre a bírálatban megfogalmazott sorrendben reflektálnék.

1. A 2.3.8 ábra (29. oldal) jobb oldali paneljén az látható, hogy az anionáram pH = 11-nél nagyobb, mint pH = 9-nél a pórus "p" tartományaiban, noha egyébként az anionáram a pH növekedésével a pórus minden részében csökken. Mi ennek a váratlan jelenségnek az oka?

A 1. ábra bal alsó panele mutatja a kérdéses áramadatokat. A különböző színezésű régiók eltérő pH-régiókat (savas, semleges vagy közel semleges, bázikus) jelölnek - ezeket nem kellett volna kiszíneznem, félreérthető. pH = 9 esetén a nanopórus töltésmintázata 0.5pn0.5p, ahol az egyes számok a felületi töltéssűrűség régióbeli abszolútértékét jelentik. p-régió esetén ezek pozitív számok, n-régió esetén negatív (-1). pH=11-re a töltésmintázat már 0n0 lesz. pH = 9 esetén a negatív töltésű régióban az anion kiüresedési zónája mélyebb, mint pH = 11-nél (2. ábra). Ha pedig mélyebb egy kiüresedési zóna, az kisebb ionáramot jelent az adott ionra vonatkozólag.



1. ábra. A pH és a pórusban levő különböző töltött régiók felületi töltésének viszonya (bal felső panel), pozitív töltésekre (kék) és negatív töltésekre (piros), a tranzisztoron át folyó individuális (kation: kék, anion: piros) és teljesáramok (fekete), mint a pH függvénye (bal alsó panel), az áramadatok értéke logaritmikus skálán ábrázolva. A jobb oldali ábrákon a különböző válaszfüggvényeket ábrázolom, a szelektivitást (felső panel) és a kapcsolási függvényt (alsó panel), a pH függvényében.



2. ábra. A pH függvényében az individuális axiális koncentrációprofilok, kation (bal panel) és anion (jobb panel) esetén, logaritmikus skálán. pH = 3, 5, 7, 9 és 11-hez rendben a következő színű görbék tartoznak: zöld, sárga, kék, piros és fekete. Az y-tengely értéke logaritmikus skálán szerepel.

Míg pH = 9-nél a két pozitív töltésű régió jelenléte miatt a kationok kevésbé tudják árnyékolni a középső régiót, és ezzel a negatív régió erősebb hatással van az anionokra, addig pH = 11 esetén nincs pozitív töltésű régió, ami kifejtene a taszító hatását a kationokra. A negatív töltésű régiót hatékonyabban árnyékolják a kationok, aminek következtében annak taszító hatása az anionokra kevésbé érvényesül, vagyis az anionáram pH = 9-hez képest nagyobb lesz.

2. Tekintve hogy a pórushossz növelésével a 2.4 fejezetben bemutatott Du_2 skálaparaméter használata mellett csökken, míg a Du_1 skálaparaméter használata mellett nő az eredmények széttartása, nem elképzelhető hogy λ egy 1 és 2 közé eső kitevőjével lenne megalkotható egy pórushossztól is független skálaparaméter?

Köszönöm a kérdést. A kutatómunka során több ötlet is felmerült, hogy egységesítjük a két skálaparamétert (Du_2 és Du_1). Az első, amelyet publikáltunk, a következő módon néz ki: [1]

$$Du' = Du_2 \frac{1}{1 + a(c) \frac{\lambda_D}{R}}$$

ahol Du' a skálaparaméter, R a pórusugár, λ_D a Debye árnyékolási hossz, $a(c)$ pedig az elektrolit tömbfázisbeli koncentrációjától (c) függő, illeszthető paraméter. Du' függvényében, a különböző pórushosszúsághoz tartozó szelektivitás-görbék is egybeskálázódnak.

Egy másik ötletben az árnyékolási hossz kitevője lenne a változtatható paraméter. Ezt a következő alakban képzeltük el:

$$mDu = \frac{\sigma \lambda^n}{eR}$$

ahol mDu az univerzális skálaparaméter, σ a felületi töltéssűrűség, e az elektron töltése, R a pórusugár, λ egy jól választott elektrosztatikus árnyékolási hossz (Debye vagy MSA), n pedig a következő módon definiálható:

$$n = 1 + f(c, R, L)$$

ahol $f \in [0, 1]$ és L a pórushossz. A pórushossztól a skálaparaméter nem független, és nem is

tudnánk függetlenné tenni. Egyelőre az f függvény alakja explicite nem ismert.

Egy univerzális skálaparaméter megalkotása másként is lehetséges lehet: ha a tömbfázisbeli árnyékolási hosszak alkalmazását mellőzzük, és újradefiniáljuk ezt az árnyékolási hosszat, figyelembe véve a pórus dimenzionalitását (mennyire „confined”): [2]

$$\lambda = (cl_B)^{-d}$$

ahol d a dimenzionalitás mértéke. Tömbfázisú elektrolitok esetén $d = 3$, visszakapható a Debye-féle árnyékolási hossz. Végtelenül hosszú pórusokra $d = 2$, ebben az esetben λc^{-1} -el arányos. Ezek egybevágnak eredményeinkkel, miszerint Du_2 az árnyékolási hossz négyzetével, azaz c^{-1} -el arányos, míg Du_2 az árnyékolási hosszal, azaz $c^{-0.5}$ -el arányos. Végessé hosszúságú nanopórusok esetén d értéke 2 és 3 közötti, de f -hez hasonlóan itt sem ismert a pontos összefüggés L , R és d között. Ez sok szimulációt igényel, dolgozunk rajta.

3. **Az elektorreológiai fluidumok vizsgálata azt mutatta, hogy e rendszerek tulajdonságai hasonló függést mutatnak a sűrűségtől és a dipólusmomentumok (vagy a térerősség) négyzetétől. Gondolt a szerző ezek alapján arra, hogy a nanopórusokkal kapcsolatos kutatásaihoz hasonlóan itt is keressen egy alkalmas skálaparamétert?**

Skálázódó mennyiségeket találtam (pl. az egyrészeske dipoláris energia és az átlagos lánc hossz t^*/γ^* függvényében, miközben a γ^* -ot változtatom), de a nanopórusos rendszerhez hasonló skálaparaméter megalkotása nem volt cél. Nem is lehet univerzális skálaparamétert megalkotni, mivel E^* (vagy μ^*) függvényében a vizsgált mennyiségek (pl. időállandók) nemmonoton viselkedést mutattak.

Cserébe a szimulációkban alkalmazott redukált mennyiségek viszonyszámokként értelmezhetők, amelyekből következtethetünk a rendszerben uralkodó folyamatok viszonyaira.

- μ^* az elektromos tér rendező és a hőmozgás rendezetlenné tevő hatásáról ad számot (irodalom: λ [3])
- γ^* hőmozgás vs. közeg lassító ereje (irodalom: Mason-szám)

Még egyszer szeretném megköszönni professzor úrnak a bírálatot és a kérdéseit.

Veszprém, 2021. május 20.

Ferbj Dávid
doktorjelölt

Hivatkozások

- [1] Zs. Sarkadi, D. Fertig, Z. Ható, M. Valiskó, and D. Boda. From nanotubes to nanoholes: Scaling of selectivity in uniformly charged nanopores through the dukhin number for 1:1 electrolytes. *J. Chem. Phys.*, 154(15):154704, 2021.
- [2] A. Levy, J. P. de Souza, and M. Z. Bazant. Breakdown of electroneutrality in nanopores. *J. Coll. Inter. Sci.*, 579:162–176, 2020.
- [3] Y. Baxter-Drayton and J. F. Brady. Brownian electrorheological fluids as a model for flocculated dispersions. *J. Rheol.*, 40(6):1027–1056, 1996.