

Válasz Prof. Pusztai László bírálataira

Jelölt: Decsi Péter

PhD értekezés: *Intelligens anyagok nemlineáris mágneses és elektromos tulajdonságainak vizsgálata*

Tisztelt Prof. Pusztai László!

Mindenekelőtt szeretném megköszönni az értekezésem alapos áttanulmányozását mind a műhelyvita előtt, mind most. Köszönöm a támogató összegzést, valamint a dolgozat lényegi pontjait érintő kérdéseit és kritikai megjegyzéseit. Külön köszönöm, hogy a dolgozatban megfogalmazott téziseket új tudományos eredményként elfogadta, és az értekezést nyilvános védésre, illetve elfogadásra javasolta.

1. A címben szereplő „elektromos tulajdonságok” kifejezésről

A dolgozat címében szerepel az „elektromos tulajdonságainak” kifejezés, miközben az értekezés tényleges tartalma lényegében mágneses folyadékok mágneses szuszceptibilitásának vizsgálatára korlátozódik.

A felvetéssel egyetértek, valóban szerencsésebb lett volna a címet szűkebben, a dolgozat tényleges fókuszához igazítani. A doktori téma eredeti kiírása tágabb volt: intelligens anyagok nemlineáris elektromos és mágneses tulajdonságainak lock-in méréstechnikával történő vizsgálatára irányult. A kutatómunka előrehaladtával a kísérleti fejlesztés és az elméleti modellezés súlypontja egyértelműen a mágneses folyadékok dinamikus mágneses szuszceptibilitására helyeződött át.

Ennek két fő oka volt. Egyrészt a saját fejlesztésű mérőrendszer megépítése, stabilizálása, kalibrálása és validálásra tett kísérlete önmagában jelentős feladatnak bizonyult. Másrészt a mágneses folyadékok - különösen a ferrofluidumok és magnetoreológiai folyadékok - esetén a komplex szuszceptibilitás frekvenciafüggése, a relaxációs jelenségek és a nemlineáris harmonikus válasz már önmagukban is kellően gazdag kutatási témát adtak.

Ezt már a műhelyvita során is jelezte, észrevételével egyetértek, de a benyújtási szakaszban a cím módosítása eljárásrendileg már nem volt reálisan lefolytatható.

Annak érdekében, hogy ezt a hibát tompítsam, a dolgozat bevezetésében igyekeztem jelezni a fókuszváltást: ott leírtam, hogy az eredeti témakiírás tágabb volt, de az értekezésben a munka a dinamikus mágneses szuszceptibilitás frekvenciafüggő vizsgálatára szűkülte. A mórósi olv és a lock-in detektálás elvileg elektromos szuszceptibilitási vagy dielektromos vizsgálatokra is adaptálható, de az értekezésben ilyen irányú kísérleti eredményeket nem mutatok be.

2. Miért volt szükség új mérőberendezés tervezésére és építésére?

A dolgozatban vizsgált mennyiség nem egyszerűen egy statikus vagy kisfrekvenciás mágneses szuszeptibilitási érték volt, hanem a komplex, frekvenciafüggő mágneses szuszeptibilitás, vagyis a χ' és χ'' komponensek meghatározása. Ehhez olyan rendszerre volt szükség, amely: egyszerre tud stabil, jól definiált váltakozó mágneses teret létrehozni, képes a nagyon kis indukált jelek fázisérzékeny mérésére, elválasztja a valós és képzetes szuszeptibilitási komponenst, alkalmas több frekvencián mérésre, és későbbi fejlesztési irányként harmonikus komponensek mérésére is továbbfejleszthető.

A klasszikus erőmérő módszerek, például a Gouy- vagy Faraday-mérleg, alapvetően statikus vagy kvázistatikus mérésekhez alkalmasak és kevésbé felelnek meg a frekvenciafüggő komplex válasz mérésére. A közvetlen magnetométerek, például a VSM vagy SQUID rendszerek nagyon érzékenyek, de a dolgozat szempontjából nem feltétlenül optimálisak: drágák, összetettek, és nem elsősorban folyadékminták rutinszerű, frekvenciafüggő, lock-in alapú vizsgálatára vannak optimalizálva.

A vizsgált anyagok anyagi minősége tehát valóban fontos tényező. A ferrofluidumoknál a relaxációs viselkedés, a polidiszperzitás, a Brown- és Néel-relaxáció, valamint az aggregáció lehetősége miatt a spektrum alakja sokkal több információt hordoz, mint egyetlen skalár szuszeptibilitási adat. A magnetoreológiai folyadék esetén ehhez még hozzájárul az ülepedés, a mikronos részecskeméret, az örvényáramos veszteségek lehetősége is.

A saját fejlesztésű berendezés megépítésének célja tehát nem az volt, hogy minden létező mérési módszert kiváltson, hanem az, hogy a mágneses folyadékok vizsgálatához egy jól kontrollálható, reprodukálható, fejleszthető és a nemlineáris mérések felé továbbfejleszthető platformot hozzon létre.

3) A validáció és az irodalmi adatokkal való összehasonlítás kérdése

A harmadik kérdés a mérőberendezés validációjára vonatkozik. Jogosan merül fel a hiányérzet, hogy miért nem szerepel közvetlen összehasonlítás irodalmi adatokkal, illetve valóban nem létezik-e ilyen mérés a kiválasztott referenciafolyadékokra.

Az általam elérhető szakirodalomban és gyártói dokumentációban nem találtam olyan, közvetlenül összevethető, frekvenciafüggő komplex szuszeptibilitási spektrumot, amely ugyanazon kereskedelmi mintákra, azonos vagy pontosan ismert mérési körülmények között vonatkozott volna.

Ez különösen azért problémás, mert a vizsgált anyagok kereskedelmi ferrofluidumok és magnetoreológiai folyadékok. Ezeknél a konkrét minta állapota, kora, előélete, koncentrációja, esetleges párolgása vagy ülepedése jelentősen befolyásolhatja az eredményeket. A dolgozatban is szerepel, hogy például az EMG700 esetében a gyártó által megadott kezdeti szuszceptibilitási érték rendelkezésre áll, de nem ismert, hogy azt milyen mérési módszerrel, milyen hőmérsékleten, milyen frekvencián, milyen mintakezeléssel és milyen korú mintán határozták meg. Ezért az ilyen adat csak nagyságrendi tájékozódásra alkalmas.

Nem azt állítom tehát, hogy a szakirodalomban elvileg nem létezhet semmilyen mérés ezekhez hasonló anyagokra, hanem azt, hogy a dolgozatban vizsgált konkrét anyagokra nem találtam olyan közvetlen, részletes és reprodukálható irodalmi spektrumot, amely valódi metrológiai összehasonlításra alkalmas lett volna.

A validációt ezért több lépésben végeztem el. Először azt vizsgáltam, hogy a kapott spektrumok fizikailag értelmezhetőek-e. A ferrofluidumoknál a χ' komponens kis frekvencián közel állandó, majd a relaxációs tartományban csökken, míg a χ'' komponens maximumot mutat. Ez megfelel a relaxációs válasz várható alakjának. A spektrumok Cole-Cole típusú illesztése jó egyezést adott, a dolgozatban szereplő egyik illesztés együtthatója 99,85%. A hőmérsékletfüggő mérésből becsült aktiválási energia illesztése szintén érdemi korrelációt mutatott.

Második validációs lépésként a méréseket összehasonlítottam a kutatócsoportban fejlesztett, RLC impedanciamérésen alapuló másik berendezés eredményeivel. A két rendszer működési elve és sávzélessége eltérő, de van közöttük átfedő frekvenciatartomány. Az azonos mintákon, kis időeltolódással végzett mérések alapján a spektrumok jellege és nagyságrendje összhangban volt. Az eltérések elsősorban a két mérőelv eltérő sávzélességéből és érzékenységi tartományából adódtak.

Ezt a megoldást nem tekintem olyan erős validációnak, mint amilyen egy független, nemzetközileg közölt, azonos körülmények között végzett mérés lenne. A felvetés tehát jogos, a validálás lehet, hogy túlságosan erős szó, tekintsünk erre inkább belső és fizikai konzisztencia-vizsgálatként, amelyet független laboratóriumi összehasonlítással, tanúsított referenciaanyaggal vagy kereskedelmi AC szuszceptométerrel végzett párhuzamos méréssel a jövőben tovább kell erősíteni.

4) A mérési módszer szorosabb kapcsolódása az elméleti eredményekhez

A mérőberendezés elsődleges feladata a mágneses folyadékok komplex dinamikus szuszceptibilitásának mérése. Az elméleti modell pedig azt írja le, hogy a mágneses folyadékok - a dipoláris keménygömb-modell és az MSA közelítés keretében - hogyan válaszolnak váltakozó, illetve AC+DC mágneses térre. A kettő között tehát a közös mennyiség maga a komplex szuszceptibilitás.

A 4. fejezetben először a tisztán váltakozó, AC gerjesztésű esetet tárgyaltam. Ez azért külön fejezet, mert ez a szimmetrikus alapeset: a mágnesezettség térerősség szerinti sorfejtésében a spontán mágnesezettség hiánya és az $M(-H) = -M(H)$ szimmetria miatt csak páratlan hatványok maradnak. Amikor ebből szuszceptibilitást képzünk, vagyis deriválunk H szerint, a kifejtés páros hatványokat tartalmaz. Tisztán szinuszos AC térben ezért a szuszceptibilitás időfüggésében a páros harmonikus szerkezet jelenik meg.

Az 5. fejezetben ezzel szemben az AC térre szuperponált DC tér esetét tárgyalom. A DC komponens megtöri az előbbi szimmetriát, ezért új harmonikus komponensek, köztük páratlan harmonikusok is megjelennek a szuszceptibilitási spektrumban. Ez fizikailag is fontos, mert DC előmágnesezéssel a nemlineáris válasz módosítható, sőt nagy DC/AC arány esetén lényegében el is nyomható. Ez a jelenség például mágneses részecske képalkotásban és mágneses hipertermiában is releváns.

A hetedrendű sorfejtést azért választottam, mert ez még zárt alakban kezelhető, ugyanakkor már tartalmazza az m_1 , m_3 , m_5 és m_7 nemlineáris együttthatókat. Így a modell nemcsak az első nemlineáris korrekciót, hanem a magasabb rendű harmonikusok egy részét és az alacsonyabb harmonikusok pontosabb amplitúdókorrekcióit is képes leírni. A hetedrendű sorfejtés tehát kompromisszum az analitikus kezelhetőség és a nemlineáris hatások részletesebb leírása között, amit a gyakorlatban is lehet mérni a mérőrendszer továbbfejlesztésével. A numerikus összehasonlítások alapján gyenge és közepes terekben, tipikusan $H_0^* < 1,4$ tartományban, a sorfejtés jól közelíti az egzakt MSA megoldást.

A valós rendszerekre való alkalmazhatóságot illetően fontos hangsúlyozni a modell korlátait. Az MSA-alapú leírás ideális, monodiszperz dipoláris keménygömb-rendszerből indul ki. A valós ferrofluidumok ezzel szemben polidiszperzek, felületaktív anyagot tartalmaznak, Brown- és Néel-relaxáció is szerepet játszhat bennük, továbbá aggregáció, klaszterképződés és mintaszerkezeti hatások is felléphetnek. Ezért az MSA-modellt nem tekintem a valós minta teljes, minden részletre kiterjedő leírásának.

Ugyanakkor nagyon hasznos referencia- és kiindulási modellnek tartom. Az MSA előnye, hogy a szuszceptibilitást nem pusztán illesztési paraméterként kezeli (mint pl. a Cole-Cole modell), hanem kapcsolatot teremt a részecskesűrűség, a dipólusmomentum, a hőmérséklet és a kölcsönhatások között. Ezért a mért spektrumokból - megfelelő kiegészítő mérésekkel és korlátozott érvényességi tartományban - effektív fizikai paraméterek becslése válhat lehetővé.

A jelen dolgozatban a kísérleti rendszer validációja főként a lineáris komplex szuszceptibilitás mérésére irányult. A nemlineáris harmonikus komponensek kísérleti

vizsgálata a munka következő lépcsője lehet. Ehhez szükséges a nagyobb frekvenciás kalibráció javítása, a gerjesztési amplitúdó pontosabb kontrollja, DC előmágnesezéses mérési sorok bevezetése, valamint a lock-in detektálás harmonikus módjainak célzott alkalmazása. Ebben az esetben már közvetlenül összevethetők lennének a mért harmonikus amplitúdók az MSA-alapú elméleti előrejelzésekkel. Erre vonatkozóan semmilyen mérési eredményt nem találtam a szakirodalomban, így még nagyobb tudományos értéke lehet.

5) Technikai, pontosítási megjegyzések

Köszönöm az alapos áttekintést és a bírálatban megfogalmazott szerkesztési, terminológiai és formai észrevételeket is. A dolgozatot Latex-ben készítettem, amely miatt a helyesírásellenőrzés sokkal nagyobb figyelmet igényelt volna.

Sajnos a jelenlegi fázisban már nincs módom a hibák javítására, de bízom benne, hogy a dolgozat érdemi részét nem érintik.

A „dc” és „DC” írásmód esetén még maradtak ellentmondások, annak ellenére, hogy a korábbi bírálatában ezt már jelezte.

Az „izotrop” és „izotróp” alakok közül magyar szövegben az „izotróp” formát használnám egységesen.

A 2.2.1., 2.2.2. és több további alfejezetben jogosan hiányolja az alapvető hivatkozásokat. Ezek a részek tankönyvi háttérismeretként szerepelnek, és hivatkoztam is őket, de valóban célszerű lett volna még több ponton jelezni.

A „MFA formában” kifejezésnél az MFA alatt az Mean Field Approximation, vagyis az átlagtér-közelítés értendő. Ezt valóban ki kellett volna írni és röviden meg kellett volna magyarázni, különösen azért, mert a szövegben az MSA mellett egy másik közelítésként jelenik meg.

A lock-in méréstechnikáról szóló rész terjedelmét illetően elfogadom, hogy a dolgozat egészéhez képest hosszúnak tűnhet. Azért kapott nagyobb hangsúlyt, mert a saját fejlesztésű mérőrendszer működése szempontjából ez kulcstechnika, és a mérési eredmények értelmezéséhez fontosnak tartottam a fázisérzékeny detektálás részletes bemutatását. Ugyanakkor egy tömörebb, célzottabban a saját berendezésre koncentráló változat szerkesztési szempontból valóban előnyösebb lett volna.

A „teljes söprés” (full sweep) kifejezés helyett kevésbé magyartalan lenne „a teljes frekvenciatartomány végigmérése”.

A 4.1.2. fejezetnél valóban hasznos lett volna külön kiemelni, hogy a mágnesezettség páratlan hatványsorából a H szerinti deriválás következtében a szuszeptibilitás páros

hatványokat tartalmazó kifejtése adódik. Ez segíti annak megértését is, hogy tisztán AC térben miért a páros harmonikus szerkezet jelenik meg a szuszceptibilitásban.

Az 5.2. egyenletet megelőző „alakítjuk az egyenletet” megfogalmazásnál valóban a 4.7. egyenletre, vagyis a térerősségfüggő szuszceptibilitás sorfejtett alakjára kellett volna egyértelműen visszautalni.

Tisztelettel köszönöm a részletes bírálatot és a támogatást most és az előbírálásában is, a kérdései segítettek pontosabban megfogalmazni a dolgozat fókuszát, a mérőberendezés fejlesztésének indokait, a validáció korlátait, valamint az elméleti és kísérleti munka kapcsolatát.

Tisztelettel:



Decsi Péter