

OPPONENSI VÉLEMÉNY

Dr. Székely Edit

*„Oldószer, reagens vagy kicsapószer:
a szuperkritikus szén-dioxid változatos felhasználási lehetőségei”
címmel elkészített akadémiai doktori értekezéséről*

Székely Edit több mint húsz éve vizsgálja, hogy miként bővíthetők a szuperkritikus szén-dioxid alkalmazási lehetőségei. Ez alatt az idő alatt nem csupán új készülékeket és mérési módszereket fejlesztett, hanem azok innovatív alkalmazásával értékes tudományos eredményeket ért el enantiomerek elválasztása, enzimkatalizált rezolválás, reaktív extrakció, aerogélek szárítása, nanocsövek töltése, és ionos folyadékok és szuperkritikus oldószerek kölcsönhatásának leírása területén.

Bár Székely Edit jelenlegi kutatási területe már túlmutat ezen a már önmagában rendkívül széles tématerületen, az eredmények jelentősége és alkalmazhatósága miatt az értekezés témaválasztását megfelelőnek és korszerűnek tartom.

A dolgozatban összefoglalt kutatómunka kiváló minőségét megkérdőjelezhetetlenül előre vetíti, hogy a téziseket 29 többségében elismert nemzetközi folyóiratban megjelent közlemény támasztja alá. A publikációk csaknem kizárólag az elmúlt 10 évben születtek, jelentős hányadukra már több mint 10 hivatkozás érkezett, így az értekezés mögött álló publikációs tevékenység elismerésre méltó. A jelölt munkájának értékét jelzi, hogy a Google Scholar alapján eddigi publikációira több mint 700 hivatkozást kapott, az évente érkező új hivatkozásainak száma dinamikusan növekszik.

A munka rendkívül bőséges: 169 gépelt oldalt, több mint 80 szépen szerkesztett ábrát és 271 irodalmi hivatkozást tartalmaz. A kettős irodalomjegyzék használata példaértékű: a római számozással jelzett disszertáció alapját képező saját publikációk könnyen követhetően elválnak a többi hivatkozástól. Az eredmények megértését a rendkívüli alaposággal összeállított jelölésjegyzék és a vizsgált vegyületeket összefoglaló táblázat is nagyban segíti.

Az értekezés egyes fejezeteinek értékelése

Székely Edit tudományos munkássága igen szerteágazó, így nem volt könnyű helyzetben, amikor a szuperkritikus szén-dioxiddal kapcsolatos eredményeinek összefoglalására vállalkozott. A feladatot kitűnően megoldotta. Azon túl, hogy a lehető legtöbb eredményt sikerült a dolgozatban bemutatnia, a rendkívül jó pedagógiai érzékkel felépített fejezeteknek köszönhetően a területen kevésbé jártas olvasók számára is könnyen követhető dolgozat született.

A rendkívül informatív első fejezet jól összefoglalja a doktori mű témaköreit és ismerteti annak felépítését.

Nagyon logikus vonalat követő dolgozat második fejezete a kutatásban felhasznált szuperkritikus szén-dioxid tulajdonságait és a tulajdonságokat leíró modelleket mutatja be rendkívül jó stílusban, megfelelő mélységben. Az elsődlegesen kísérletes munkát ismertető dolgozat értékét a modellek és becslési módszerek alkalmazási részletivel kapcsolatos ajánlások is növelik.

A harmadik fejezet a kutatás céljából kifejlesztett nagy nyomású mérési módszerek elvét és kivitelezésének részleteit ismerteti. Ez a rész már önálló és értékes tudományos eredményeket tartalmaz, ugyanis a pályázó kutatócsoportja korábban nem alkalmazott mérési technikákat dolgozott ki szuperkritikus szén-dioxidban és elegyeiben való oldhatóság, oldatsűrűség, és - viszkozitás mérésére.

Ez az első három fejezet a dolgozat érdemi részének harmadát teszi ki. Első pillanatra szokatlan felépítést nagyon jónak találtam, ugyanis ezek a fejezetek megfelelő alapot nyújtanak az új tudományos eredményeket rendkívül tömören ismertető további fejezetekhez.

A negyedik fejezetben a szén-dioxidot, mint reakcióközeget és szelektív oldószert alkalmazza.

Ez a fejezet akár önmagában képezhetné egy doktori mű alapját, ugyanis jelentős hatékonyságnövelés elérésére alkalmas új eljárások kerülnek bemutatásra a következő alkalmazási területeken:

- diasztereomer-képzésen alapuló rezolválás,
- enzimkatakizált kinetikus rezolválás (folyamatos technológiával is),
- szén nanocsövek töltése,
- aerogélek szárítása,
- polimerek színezése.

A szerző rendkívüli alapossága és jó pedagógiai készsége már ebben a fejezetben felvillan, minden alfejezet példamutató módon ismerteti a fejlesztési probléma hátterét, a kutatás idejében elérhető legjobb megoldások jellemzőit, a kísérletek lépéseit és eredményeit.

Az ismertetett K+F tevékenység megalapozottságát jól tükrözi a megfelelően alkalmazott eszköztár:

- kísérlettervezésen alapuló optimálást alkalmaz (pl. az extrakciós nyomás és hőmérséklet beállítására)
- egykrisály-röntgendiffrakciós elemzést alkalmaz az enantiomerek előállításához vezető módszer fejlesztésében
- szakaszos reaktorral nyer reakciókinetikai eredmények alapján folyamatos kialakítású berendezést tervez
- a szén nanocsövek töltésére kidolgozott eljárását transzmissziós, az aerogélek szárításával kapcsolatos eljárását pásztázó elektronmikroszkópos felvételekkel is validálja
- differenciális pásztázó kalorimetriás (DSC) vizsgálatot alkalmaz a polimerek alacsony hőmérsékleten történő színezése alkalmas technológia fejlesztése során.

Az ötödik fejezet olyan alkalmazási lehetőségeket mutat be, amikor a szén-dioxid nem inertként viselkedik, hanem meghatározó annak megkötődése.

Az első alfejezet ionos folyadékok és a szén-dioxid közötti reakciók vizsgálatával kapcsolatos vizsgálatokat mutatja be, a második alfejezet a karbamát-sók képződésével kapcsolatos kutatásba enged bepillantást, míg a harmadik alfejezet a szén-dioxid geológia tárolása során fellépő reakciók feltárásával kapcsolatos eredményeket ismerteti.

A hatodik fejezetben a szén-dioxid mint kicsapószer kerül alkalmazásra diasztereomer sóképzésen alapuló rezolválásban, míg a hetedik fejezet egy nagy enantiomertisztaságú szilárd termék előállítására alkalmas módszert ismertet. A fejezetek megfelelő részletességgel ismertetik a beállítandó műveleti paraméterek (nyomás, hőmérséklet, oldószer koncentráció, látszólagos sókoncentráció) hatását.

A nyolcadik fejezet az eredményeket foglalja össze és emeli ki azok újdonságtartamát.

A dolgozat egészének formai értékelése, kritikai észrevételek

Az egyes fejezetek összetettsége és terjedelme jelentősen eltér egymástól. Ezt a szokatlannak tűnő szerkezeti felépítést a témakörök közti logikai kapcsolat erősségének köszönhetően fenntartás nélkül elfogadhatónak tartom.

Az egyes fejezetek felépítését, a stílusát, a dolgozatból sugárzó alaposságot, a szerző rendkívül szabatos elemző jellegű megjegyzéseinek és megállapításainak megfogalmazási módját példaértékűnek tartom.

A bírálótól elvárt, hogy az elismerő megjegyzéseken túl a további munkát segítő fejlesztési lehetőségekre is rávilágításon. Ennek a feladatnak a tükrében az alábbi kritikai megjegyzéseket tudom a dolgozat formai értékeléséhez fűzni:

- Az eredmények átfogó értékelését jobban segítette volna, ha az összefoglalás a dolgozat felépítését követi.
- A dolgozat fejezetei és a tézisek tartalma és sorrendje sajnos nincsenek összhangban, teljesen más felépítést követnek. Ez a szokatlan megoldást nem látom indokoltnak. Úgy érzem, hogy nagyban segítette volna az értekezés eredményeinek ismertetését, ha az egyes alfejezetek zárásaként az eredmények tézisszerű összefoglalása is megtörténik a kapcsolódó tézispontok és publikációk pontos megnevezésével.

A doktori mű tudományos eredményei újdonságtartalma

Anélkül, hogy megkísérelném a pályázó értekezésének, vagy tézisének ismertetését, még kevésbé a tézisek alapját képező 29 kiválasztott közlemény megállapításainak összefoglalását, csak néhány főbb új tudományos eredményt önkényes kiemelésére vállalkozom:

- Elsőként valósított meg diasztereomersó-képzést és sóképzést követő extrakciós elválasztást tiszta szuperkritikus szén-dioxidban.
- Az általa kialakított nagynyomású mérőrendszer alkalmazásával szuperkritikus szén-dioxid alkalmazásával elsőként állított elő ionos folyadékokban szén-dioxid adduktokat.
- Mérésekkel igazolta, hogy a szén-dioxid kőzetekben történő tárolását leíró geokémiai modelleket módosítani szükséges ugyanis a kalcit beoldódása jelentősebb mértékű mint azt a modellek korábban előre jelezték, valamint a fedőkőzetek agyagásványyaiból a minor oldatok oldatba kerülése számottevő.
- Az eddig elérhető eljárásoknál gyorsabb és egyszerűbb módon vitt be egyfalú szén neoncsőbe fullerént, fullerénhez kapcsolt lumineszcens lantanoida komplexet és koronént.

Az értekezés nyolcadik fejezetében a Jelölt Összefoglalásával egyetértésben megállapítom, hogy a doktori műben ismertetett kutatás jelentős mértékben bővítette a szuperkritikus szén-dioxidalkalmazási lehetőségeit, a kapcsolódó publikációkban megfogalmazott megállapítások új ismeretekkel bővítették a szakirodalmat.

A disszertáció kapcsán a felmerült kérdések

- Milyen esetekben javasolja az kidolgozott folyamatos enzimmatalizált kinetikus rezolválás alkalmazását? Milyen problémákat kell megoldani az állandó termékminőség biztosításának érdekében?
- Milyen megoldandó K+F feladatok merülhetnek fel a kidolgozott eljárások méretnövelésével kapcsolatban? Van-e ezen a területen esetleg már olyan tapasztalat amely az eljárások gyártásban való alkalmazhatóságára vonatkozik (pl. méretnövelési és ismételhetőség problémák) ?
- Az areogélek szárítására vonatkozó eredmények a *Drying of resorcinol-formaldehyde gels with CO₂* publikáció hivatkozása alapján is jelentős érdeklődésre tartanak számot. Ahogy a dolgozat is rögzíti, mára a különféle aerogélek szuperkritikus szárítása egyre inkább elterjed eljárás. Milyen próbálkozások történtek az irodalomban és az Ön kutatásai során ezen eljárások optimális üzemeltetési paramétereinek meghatározására, a termékminőség biztosítására és javítására?
- A polimerfestési kísérletekben a festékfelvétel idejét 300 percig vizsgálta. Az ábrán egyes megoldások esetén (pl. 10Mpa-kevert) a festékfelvétel jelentős visszaesése látható, míg 20Mpa-kevert esetben a festékfelvétel monoton nő (esetleg jó lett volna látni, hogy meddig). Mi lehet az oka ennek a jelenségnek? A homogenitás mérésére milyen megoldást javasolna? Miként változott a homogenitás az idővel? Mi a módszer gyakorlati alkalmazásának előnye/hátránya?
- Rendkívül érdekes modellezési kérdés is előkerül a 6.3 fejezetben, amikor a rendszer szelektivitásának leírására a Hensen oldhatósági paraméter két tagja mellett a nyomást választja mint független változót. A megfontolással teljes mértékben egyetértve felmerült a kérdés, hogy mit gondol, mennyire lett volna érdemes a kérdést alaposabban megvizsgálni (pl. keresztvalidálás alkalmazásával, a változók függetlenségének statisztikai eszközökkel történő ellenőrzésével)?

Opponensi nyilatkozat

Az értekezés alapján a pályázót kiválóan felkészült, alapos, munkájára igényes, jó pedagógiai és gyakorlati érzéssel rendelkező kutatónak ismertem meg, aki mind elméleti, mind gyakorlati szempontból fontos területen ért el nemzetközi viszonylatban is kiemelkedő eredményt és széleskörű ismeretekkel rendelkezik nagynyomású eljárások tervezésében és a kapcsolódó kísérlettervezési és analitikai technikák alkalmazásában.

A pályázó kutatómunkájában elismerésre méltóan van egyszerre jelen az új tudományos eredmények elérésére való törekvés és a gyakorlati hasznosítás igénye és a kooperációra való képesség.

A doktori értekezés a szakmai követelményeknek megfelel.

A doktori mű hiteles adatokat tartalmaz.

A tézisfüzetben összefoglalt öt tézispont mindegyik altézisét új tudományos eredményként fogadom el.

A bemutatott eredményeket a Jelölt új tudományos eredményeinek ismerem el, melyek magas szintű tudományos tevékenységet tükröznek és biztosítékot jelentenek a további színvonalas kutatómunkára.

A fentiek alapján javaslom az MTA Doktori Tanácsának a benyújtott értekezés nyilvános vitára bocsátását, majd az Akadémiai Doktori cím odaítélését.

Veszprém, 2020. május 26.



Abonyi János

MTA doktora