

dc_1081_15

MTA DOKTORI ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

Kémiai mintázatok szisztematikus előállítása
nyitott reakció-diffúzió rendszerekben

Szalai István



ELTE Természettudományi Kar, Kémiai Intézet,
Analitikai Kémiai Tanszék

2015



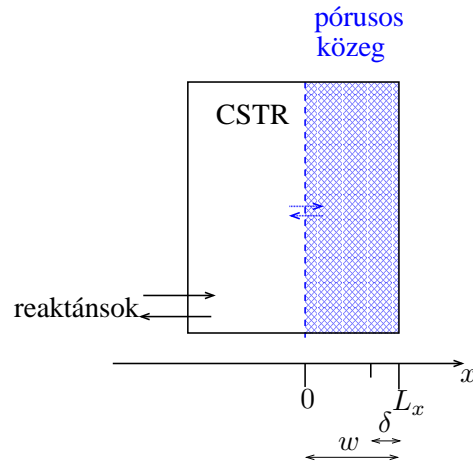
Bevezetés és célkitűzés

Értekezésemben nemlineáris kémiai reakció-diffúzió rendszerek tervezett előállítását és azok vizsgálatát mutatom be. Ezekben a rendszerekben olyan komplex viselkedésmódok jelennek meg, amelyek magyarázata rendszerszintű megközelítést igényel. Ilyen típusú jelenségek az élettelen és az élővilágban egyaránt általánosan előfordulnak, az utóbbiban alapvető jelentőséggel bírnak. Az értekezésemben tárgyalt eredmények az elmúlt tizenhárom évben születtek. Amikor 2002-ben elkezdtük ezt a kutatómunkát, meglehetősen szűkös volt a fenntartott (aszimptotikus) reakció-diffúzió jelenségek megfigyelésére alkalmas kísérleti rendszerek száma: a Belouszov-Zsabotyinszkij- és a kloritium-jodidion-malonsav reakciók mellett a jodátion-szulfition-[hexaciano-ferrát(II)]-ion reakció tartozott ebbe a körbe. Az utóbbi rendszerben azonban az eredeti kísérleti megfigyelések reprodukálása nehézséget okozott számos ezzel próbálkozó kutatócsoportnak. A szűkös paletta elmentmondásos volt annak a tükrében, hogy a 90-es évek óta nagy számban ismert oszcilláló reakciók mindegyike rendelkezik azokkal a kinetikai jellemzőkkel, amelyek alapján reakció-diffúzió mintázatok kialakítására is alkalmasak lettek volna. Ez arra sarkalt minket, hogy létrehozzunk egy szisztematikus módszert, amellyel megkereshetők az arra alkalmas kémiai rendszerekben a spontán mintázatképződés számára kedvező körülmények. Figyelembe véve, hogy a Belouszov-Zsabotyinszkij- és a kloritium-jodidion-malonsav reakciók lenyűgözően széles jelenségkör előállítására és vizsgálatára használhatóak, azt is lehetne mondani, hogy elégedjünk meg ezzel a két reakcióval ha kísérletezni akarunk ezen a területen. Fontos azonban megjegyezni, hogy mindkét reakció speciális abból a szempontból, hogy bennük nem a kiindulási anyagok, hanem a köztermékek a dinamikai viselkedés kulcsszereplői. Ez a tulajdonság teszi lehetővé azt, hogy zárt reaktorban is hosszan tartó, tranzienst periodikus jelenségeket produkáljanak. Az oszcilláló reakciók túlnyomó többségére azonban csak folyamatos reagens utánpótlás mellett, nyitott reaktorokban működik. Tisztázandó kérdésként merült fel tehát annak a kiderítése, hogy nyitott rendszerben milyen feltételeknek teljesülése esetén várható reakció-diffúzió mintázatok képződése. Tény, hogy a 90-es évek elejét követő több mint egy évtizedben nem jelent meg publikáció olyan új kémiai rendszerről amelyben nyitott reaktorban mintázatok állítottak volna elő. Ezen a vonalon tehát elakadt a kutatómunka, miközben a kémiai nemlineáris dinamika ebben az időszakban is aktívan fejlődött. A probléma megoldására az irodalomban fellelhető nagyszámú elméleti munka kevés segítséget nyújtott mert azokban általában nem vették figyelembe, hogy a kísérletekben használt reaktorokban az anyagcsere diffúzió útján történik. Az értekezésemben azt mutatom be, hogy lépésről-lépésre haladva, elsősorban saját kísérleti eredményeinkre támaszkodva, miként sikerült megoldást találnunk a reakció-diffúzió mintázatok előállításával kapcsolatban felmerülő néhány alapvető kérdésre.



Módszerek

A nyitott reakció-diffúzió rendszerek vizsgálatára egy oldalról táplált reaktorokat (OSFR, One-Side Fed Reactor) használtunk. Sematikus felépítésüket az 1. ábra mutatja. A reaktorokban használt pórusos közeg (általában agarózgél), amelyben a



1. ábra. Egy oldalról táplált reaktor (OSFR) keresztmetszeti rajza. A folyamatos, kevert tartályreaktor (CSTR) táplálja az ($x = 0$) határfelületen keresztül a w vastagságú pórusos közeget. Autokatalitikus reakció esetén, jelentős mértékű kémiai átalakulás a δ zónában megy végbe. Az x irányt megegyezés szerint a reaktor tengelyének mentén vesszük fel. A CSTR térfogata jellemzően lényegesen nagyobb mint a pórusos közegé

reakció-diffúzió jelenségek létrejönnek, az egyik felületén érintkezik egy folyamatos, kevert tartályreaktor (CSTR) reakcióelegyével. Az anyagcsere a pórusos közeg és a CSTR reakcióelegye között diffúzióval történik. A reakció ebben a konfigurációban mind a CSTR elegyében mind a pórusos közegben végbemehet. A használt reaktorokról speciális jellegük miatt részletes leírást adok az értekezésemben. A jelenségek követésére potenciometriás érzékelőket és digitális kamerákat alkalmaztam.

A kísérleti megfigyelések értelmezéséhez numerikus modellezést is végeztem. A számolásokhoz a szabadon hozzáférhető programcsomagokat (XPPAUT, CVODE) használtam. A parciális differenciálegyenletek numerikus megoldása során a véges differenciák módszerét alkalmaztam.



Tézisek

1. *Kísérletileg igazoltuk, hogy a hidrogénionok gyors diffúziójából eredő instabilitások megszűnnek gyenge polielektrolit jelenlétében. [1,4]*

A klorit-ion-tetracion-ion reakció tanulmányozása során megfigyeltük, hogy növelve a nátrium-poli(akrilát) koncentrációját, előbb az oszcilláció, majd a gerjeszthetőség is megszűnik. Tapasztalatunk szerint a „kevert” állapot (ahol a gél belsejében a reakció előrehaladása közel teljes mértékű) stabilitásának határa gyakorlatilag független a hozzáadott nátrium-poli(akrilát) mennyiségétől. Ezt azzal magyaráztuk, hogy a polielektrolit jelenléte a diffúzióra és a reakció kinetikájára azonos hatással van. Kísérleteink alapján megállapítottuk, hogy (a) a bistabilitás tartományában kialakuló frontok haladási sebessége poliakrilát hatására jelentős mértékben lecsökken; (b) elegendően nagy NaPAA koncentráció mellett a frontok mozgásának iránya a kontrollparaméter (a kísérleteinkben a kénsav betáplálási koncentrációja) változtatásával megfordíthatóvá válik.

2. *Kísérletileg igazoltuk, hogy egy bistabilitást mutató aktivátor-inhibitor típusú reakció-diffúzió rendszerben stacionárius frontpárok hozhatók létre. [2]*

A mintázatok előállításához első lépésként kísérletileg megkerestük a térbeli bistabilitás paraméter tartományát a klór-dioxid-jód-jodidion-malonsav rendszerben. A munkának ebben a fázisában fontos szerepet kapott a gyűrű alakú nyitott gélreaktor alkalmazása, amely lehetővé teszi a diffúziós anyagtranszport iránya mentén kialakuló koncentrációeloszlás megfigyelését. A térbeli bistabilitás tartományában, alkalmas perturbációval frontokat hoztunk létre és tanulmányoztuk ezek dinamikai viselkedését. Felhasználva, hogy poli(vinil-alkohol) hozzáadásával szelektíven lelassítható az aktivátor (I_3^-) effektív diffúziója, sikerült olyan körülményeket találnunk, ahol az egymás felé mozgó frontpárok egymás közelébe érve megálltak. Ezzel kísérletesen demonstráltuk, hogy egy bistabilitást mutató reakció-diffúzió rendszerben az aktivátor gátolt diffúziója létrehozhat stacionárius mintázatot.

3. *Megmutattuk, hogy Landolt-típusú reakciókban, azokat egy oldalról táplált reaktorban vizsgálva, a térbeli bistabilitás mellett csillapítatlan térbeli oszcillációk is kialakulhatnak. Az oszcillációk megjelenését diffúzióvezérelt és kinetikai instabilitások egyaránt okozhatják. [3,5]*

A jodátion-szulfition és a bromátion-szulfition rendszerekben kísérletesen meghatározott nemegyensúlyi fázisdiagramok az aktivátor-inhibitor rendszerekre jellemző kereszt alakú topológiát mutatják: a bistabilitás tartományának leszűkülését követi az oszcilláció tartományának megjelenése. Az osz-



cillációk azonban a két reakcióban teljesen eltérő körülmények között jönnek létre. A bromátion–szulfition reakcióban a térbeli oszcilláció kialakulásának paraméter-tartománya közel van a CSTR oszcillációkéhoz. Egy, az irodalomból vett kinetikai modell segítségével igazolni tudtuk, hogy ebben az esetben a térbeli oszcilláció kialakulása mögött kinetikai instabilitás áll. Az jodátion–szulfition rendszerben azonban a kísérleteink arra mutattak, hogy az oszcillációk kialakulását diffúzió vezérelt instabilitás okozza. Ezt a feltevést később numerikus szimulációkkal is alátámasztottuk. Az jodátion–szulfition rendszerben, mindezek mellett aperiodikus térbeli és időbeli oszcillációk és gerjeszthetőség kialakulását is tapasztaltuk.

4. *Kísérleteinkkel bizonyítottuk, hogy a jodátion–szulfition–[hexaciano-ferrát(II)]-ion reakció-diffúzió rendszerben inert agaróz gélt használva csak térbeli bistabilitás illetve kémiai hullámok alakulnak ki. Stacionárius mintázatok csak egy kritikus mennyiségű gyenge polielektrolit jelenlétében jöhetnek létre. [6,7]*

Mivel megfigyeléseink ellentmondásban voltak a Swinney-csoport által 90-es évek elején publikált eredményekkel, részletesen feltérképeztük a reakció viselkedését a kísérleti paraméterek széles tartományában. Megállapítottuk, hogy a Swinney-csoport által megfigyelt stacionárius mintázatok csak egy kritikus mennyiségű, gyenge polielektrolit (nátrium-poli(akrilát)) jelenlétében jönnek létre agarózgélben. Ebből azt a következtetést vontuk le, hogy az aktivátor gátolt diffúziója miatt kialakuló diffúzióvezérelt instabilitás a jelenség kialakulásában alapvető szerepet játszik. Sikerült megadunk olyan jól reprodukálható kísérleti körülményeket, amelyek lehetővé teszik a jodátion–szulfition–[hexaciano-ferrát(II)]-ion reakció-diffúzió rendszerben létrejövő gazdag dinamikai viselkedésmódok vizsgálatát.

5. *Kidolgoztunk egy kísérleti tervező módszert, melynek alkalmazásával reakció-diffúzió mintázatok állíthatók elő a rendszer nemgyensúlyi fázisdiagramjának szisztematikus feltérképezésével. A módszert sikerrel alkalmaztuk négy különböző kémiai rendszerben. Ezekben kémiai hullámok valamint Turing- és frontinstabilitások által létrehozott stacionárius mintázatok kialakulását figyeltük meg. [8–10,12–15,17–18]*

A módszer fő lépései a következők:

- (I) Kiválasztunk egy olyan, CSTR-ben bistabilitást és oszcillációt mutató reakciót, amelyben a pozitív és negatív visszacsatolási folyamatokat külön-külön kísérleti paraméterrel (pl. betáplálási koncentráció) lehet szabályozni.



- (II) A kiválasztott reakciót OSFR-ban vizsgálva megkeressük azt a paramétertartományt, ahol térbeli bistabilitás és oszcilláció alakul ki. Ennek megtalálásában arra a tapasztalatunkra támaszkodhatunk, hogy az aktivátor-inhibitor rendszerekre OSFR-ban is az úgynevezett kereszt alakú fázisdiagram jellemző: azaz a térbeli bistabilitásból indulva, az inhibíciót adó komponens koncentrációját növelve egy kritikus pont felett alakul ki a periodikus viselkedés.
- (III) Hosszú hatótávú inhibíciót alakítunk ki. Ehhez a pozitív visszacsatolási lépés egyik kulcsszereplőjének diffúzióját egy megfelelő immobilis, reverzibilis komplexképző segítségével lelassítjuk.

A módszert sikerrel alkalmaztuk mind térbeli oszcillációk, mind stacionárius mintázatok előállítására a jodátion–szulfition–tiokarbamid, a hidrogénperoxid–szulfition–[hexaciano-ferrát(II)]-ion, a hidrogénperoxid–szulfition–hidrogénkarbonátion és a bromátion–szulfition–[hexaciano-ferrát(II)]-ion reakciókban.

6. *A gél és CSTR elegye közötti diffúziós anyagtranszport szerepét kísérletesen vizsgálva megállapítottuk, hogy az lényeges szerepet játszik a negatív visszacsatolás kialakításban, továbbá azt, hogy oszcillációk a gélben csak egy kritikus gélvastagság felett jelennek meg.* [11]

A gélvastagság és az oszcillációk periódusidejének összefüggését vizsgálva a jodátion–szulfition–[hexaciano-ferrát(II)]-ion és a jodátion–szulfition–tiokarbamid rendszerekben megállapítottuk, hogy: (a) oszcilláció csak egy kritikus gélvastagság felett jelennek meg; (b) ez a kritikus gélvastagság függ a negatív visszacsatolást kiváltó komponens koncentrációjától; (c) a diffúziós anyagtranszport és az inhibíciós reakció együttesen szabja meg a kialakuló periódusidőt. A jodátion–szulfition–tiokarbamid reakciót kúp alakú gélben vizsgálva, azt tapasztaltuk, hogy az oszcilláló pH-front pozíciójához képest a nagyobb gélvastagságnál egy stacionárius jódfront is megjelenik. Ezt azzal magyaráztuk, hogy a jodátion–szulfition–tiokarbamid reakcióban, az alkalmazott körülmények között jelentőssé válik a jodidion-autokatalízis. Ezzel azt is demonstráltuk, hogy az alkalmazott gél vastagságának függvényében változik a domináns reakcióút is.

7. *Kísérletesen igazoltuk, hogy a pH-oszcillátorokra épülő reakció-diffúzió rendszerek alkalmasak indukált mintázatok létrehozására: a pH-változás által indukált kalciumion-mintázatokat hoztunk létre a bromátion–szulfition–[hexaciano-ferrát(II)]-ion reakcióban az etilén-diamin-tetraecetsav (EDTE) kalcium sójának jelenlétében.* [15]



Az indukált oszcillációk tervezésére Csörgeiné Kurin Krisztina, Orbán Miklós és Irving Epstein által javasolt módszert kiterjesztettük reakció-diffúzió rendszerekre. Az általunk vizsgált bromátion–szulfition–[hexaciano-ferrát(II)]-ion reakcióban, a kialakuló pH-mintázatot követve tolódik el a kalciumionok és az EDTE közötti egyensúlyi reakció. Azokon a helyeken, ahol savas térbeli állapot uralkodik, a kalciumionok felszabadulnak a komplexből, míg a nagyobb pH-jú területeken az EDTE-hez kötődnek. Ez a mechanizmus kalciumion-hullámok és mintázatok létrejöttéhez vezet. Megfigyeléseink szerint a kalcium-EDTE egyensúlyi reakció jelenlétében stacionárius mintázatok is kialakulhatnak. Ez azt is jelzi, hogy a pH-mintázatot adó alarendszer dinamikai viselkedése jelentősen megváltozhat a jelenlévő pH-érzékeny egyensúlyi folyamat által okozott visszacsatolás miatt.

8. *Numerikus szimulációk segítségével megmutattuk, hogy az OSFR reaktorokra jellemző vegyes peremfeltételek mellett, az oszcillációs viselkedés kialakulásában a kémiai és a diffúziós anyagtranszport által kiváltott negatív visszacsatolások egyaránt fontos szerepet játszanak. Ezekben a reaktorokban a stacionárius mintázatok kialakulásához, egy makromolekuláris komplexképző által kiváltott rövid hatótávú aktiváció és kémiai inhibíció együttes jelenléte szükséges. [16,17]*

A Landolt-típusú hidrogénionra autokatalitikus rendszerek viselkedését az OSFR reaktorokra jellemző vegyes peremfeltételek mellett vizsgálva megállapítottuk, hogy a rendszerben a térbeli bistabilitás mellett két eltérő jellegű oszcillációs viselkedésmód, biritmiticitás és káosz jelenhet meg. A gazdag dinamika viselkedés kialakulásának oka a hidrogénionok kiugró mozgékonyága következtében megjelenő diffúzióvezérelt instabilitás. Az aktivátor-inhibitor típusú kevert Landolt-rendszerben végzett numerikus szimulációk rámutattak, hogy: (a) stacionárius mintázatok az inhibitor és a makromolekuláris komplexképző együttes jelenlétében alakulnak ki; (b) a bistabilitás tartományában megjelenő stacionárius mintázatok izolált állapotot alkothatnak, ami csak véges perturbációval érhető el; (c) az inhibíció és a makromolekuláris komplexképző hatásának növelésével elérhető olyan paraméter tartomány, ahol a mintázatok monostabil állapotot alkotnak; (d) a vizsgált rendszerekre általában jellemző a kémiai és a diffúziós anyagtranszport által létrehozott inhibíció összekapcsolódása.



Publikációk és publikációs statisztika

Tudományometriai adatok a teljes életműre, a PhD fokozat megszerzése óta eltelt időszakokra és a kiválasztott 20 legjelentősebb publikációra vonatkozóan

	Mutató	Frakcionált mutató
Teljes életmű		
Publikációk száma	43	16,8
Első vagy levelező szerző	28	-
Impakt faktorok összege	121,9	40,8
Független hivatkozások száma	483	158,4
Hirsch-index	17	-
A PhD fokozat megszerzése óta eltelt időszak		
Publikációk száma	36	12,6
Első vagy levelező szerző	24	-
Impakt faktorok összege	112	37,6
Független hivatkozások száma	377	116,1
Kiválasztott 20 legjelentősebb publikáció		
Publikációk száma	20	7,4
Első vagy levelező szerző	14	-
Impakt faktorok összege	85,4	29,7
Független hivatkozások száma	382	133,1

Az értekezés alapjául szolgáló közlemények

1. I. Szalai, I., F. Gauffre, V. Labrot, J. Boissonade, P. De Kepper: Spatial Bistability in a pH Autocatalytic System: From Long to Short Range Activation
J. Phys. Chem. A, **2005**, *109*, 7843-7849.
2. I. Szalai, P. De Kepper: Turing Patterns, Spatial Bistability and Front Instabilities in a Reaction-Diffusion System
J. Phys. Chem. A, **2004**, *108*, 5315-5321.
3. I. Szalai, P. De Kepper: Spatial Bistability, Oscillations and Excitability in the Landolt Reaction
Phys. Chem. Chem. Phys., **2006**, *8*, 1105-1110.



4. J. Boissonade, P. De Kepper, F. Gauffre, I. Szalai: Spatial Bistability: A source of Complex Dynamics. From Spatio-Temporal Reaction-Diffusion Patterns to Chemomechanical Structures
Chaos, **2006**, *16*, 037110
5. Zs. Virányi, I. Szalai, J. Boissonade, P. De Kepper: Sustained Spatiotemporal Patterns in the Bromate-Sulfite Reaction
J. Phys. Chem. A, **2007**, *111*, 8090-8094.
6. I. Szalai, P. De Kepper, P.: Patterns of the Ferrocyanide-Iodate-Sulfite Reaction Revisited: The Role of Immobilized Carboxylic Functions
J. Phys. Chem. A, **2008**, *112*, 783-786.
7. I. Szalai, P. De Kepper: Pattern formation of the ferrocyanide-iodate-sulfite reaction: The control of space scale separation
Chaos, **2008**, *18*, 026105
8. J. Horváth, I. Szalai, P. De Kepper: An Experimental Design Method Leading to Chemical Turing Patterns
Science, **2009**, *324*, 772-775.
9. P. De Kepper, J. Boissonade, I. Szalai: From sustained oscillations to stationary reaction-diffusion patterns
Chemomechanical Instabilities in Responsive Materials 2009, 1-37.
10. J. Horváth, I. Szalai, I.; P. De Kepper: Pattern formation in the Thiourea-Iodate-Sulfite system: spatial bistability, waves, and stationary patterns
Physica D, **2010**, *239*, 776-784.
11. N. Takács, N.; J. Horváth, I. Szalai: Spatiotemporal Dynamics of Mixed Landolt Systems in Open Gel Reactors: Effect of Diffusive Feed
J. Phys. Chem. A, **2010**, *26*, 7063-7069.
12. I. Szalai, J. Horváth, N. Takács, P. De Kepper: Sustained self-organizing pH patterns in hydrogen peroxide driven aqueous redox systems
Phys. Chem. Chem. Phys., **2011**, *13*, 20228-20234.
13. P. De Kepper, I. Szalai: An Effective Design Method to Produce Stationary Chemical Reaction-Diffusion Patterns
Communications on Pure and Applied Analysis, **2012**, *11*, 189-207.
14. I. Szalai, D. Cuiñas, N. Takács, J. Horváth, P. De Kepper: Chemical morphogenesis: recent experimental advances in reaction-diffusion system design and control
Interface Focus, **2012**, *2*, 417-432.



15. I. Molnár, K. Kurin-Csörgei, M. Orbán, I. Szalai: Generation of spatiotemporal calcium patterns through coupling a pH oscillator to a complexation equilibrium
Chemical Communications, **2014**, 50, 4158-4160.
16. I. Szalai: Spatiotemporal Behavior Induced by Differential Diffusion in Landolt Systems
J. Phys. Chem. A, **2014**, 118, 10699-10705.
17. I. Szalai, J. Horváth, P. De Kepper: Contribution to an Effective Design Method for Stationary Reaction-Diffusion Patterns
Chaos, **2015**, 25, 064311.
18. I. Molnár, I. Szalai: Spatiotemporal Behavior Induced by Differential Diffusion in Landolt Systems
J. Phys. Chem. A, **2015**, (megjelenés alatt) DOI: 10.1021/acs.jpca.5b06545

További közlemények a PhD megszerzése óta (2000-2015)

1. I. Szalai, J. Oslonovitch, H. D. Försterling: Oscillations in the Bromomalonic Acid/Bromate System Catalyzed by $[Ru(Phen)_3]^{2+}$
J. Phys. Chem. A, **2000**, 104, 1495.
2. I. Szalai, K. Kurin-Csörgei, M. Orbán: Mechanistic studies on the bromate–1,4-cyclohexanedione–ferroin oscillatory system
Phys. Chem. Chem. Phys., **2002**, 8, 1271.
3. I. Szalai, K. Kurin-Csörgei, I. R. Epstein, M. Orbán: Dynamics and mechanism of Bromate Oscillators with 1,4-cyclohexanedione
J. Phys. Chem. A, **2003**, 107, 10074.
4. V. Labrot, P. De Kepper, J. Boissonade, I. Szalai, F. Gauffre: Wave Patterns Driven by Chemomechanical Instabilities in Responsive Gels
J. Phys. Chem. B, **2005**, 109, 21476.
5. I. Szalai, K. Kurin-Csörgei, V. Horváth, M. Orbán: New Experimental Data and Mechanistic Studies on the Bromate-Dual Substrate-Dual Catalyst Batch Oscillator
J. Phys. Chem. A, **2006**, 110, 6067.
6. K. Keresztúri, I. Szalai: Briggs-Rauscher Reaction with 1,4-Cyclohexanedione Substrate
Z. Phys. Chem., **2006**, 220, 1071.



7. K. Keresztúri, I. Szalai: Dynamics of Bromate Oscillators with 1,4-Cyclohexanedione in a Continuously Fed Stirred Tank Reactor
Chem. Phys. Lett., **2006**, 428, 288.
8. I. Varga, I. Szalai, R. Meszaros, T. Gilanyi: Pulsating pH-Responsive Nanogels
J. Phys. Chem. B, **2006**, 110, 20297.
9. De Kepper, P., Szalai, I., Cluzeau, P., Boissonade, J.: Spatial bistability: A versatile base for reaction- Diffusion and chemomechanical pattern formation
American Chemical Society, Polymer Preprints, Division of Polymer Chemistry **2008**, 49, 809-810.
10. B. Iván, A. Domján, G. Erdődi, Cs. Fodor, M. Haraszti, G. Kali, P. Mezey, Á. Szabó, S. L. Szabó, I. Szalai I, R. Thomann, R. Mülhaupt: Smart Nanostructured Amphiphilic Polymer Conetworks
Polymeric Materials Science and Engineering, **2009** 101, 25-926.
11. J. Horváth, I. Szalai, J. Boissonade, P. De Kepper: Oscillatory dynamics induced in a responsive gel by a non-oscillatory chemical reaction: experimental evidence
Soft Matter, **2011**, 7, 8462-8472.
12. I. Szalai, K. Kurin-Csörgei, M. Orbán: Modelling pH oscillators in open, semi-batch and batch reactors
Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis, **2012**, 106, 257-266.
13. Csörgeiné Kurin Krisztina, Szalai István, Orbán Miklós: A "nemlineáris kémiai dinamikai jelenségek" kutatása az ELTE Analitikai Kémiai Tanszékén
Magyar Kémiai Folyóirat - Kémiai Közlemények, **2012**, 118, 46-54.
14. E. Poros, K. Kurin-Csörgei, I. Szalai, M. Orbán: Oscillations in the Permanganate Oxidation of Glycine in a Stirred Flow Reactor
J. Phys. Chem. A, **2013**, 117, 9023-9027.
15. I. Molnár, N. Takács, K. Kurin-Csörgei, M. Orbán, I. Szalai: Some General Features in the Autocatalytic Reaction Between Sulfite Ion and Different Oxidants
International Journal of Chemical Kinetics, **2013**, 45, 462-468.
16. I. Szalai: Linear diffusive feed approach to explaining long range activation induced oscillations
Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis, **2014**, 111, 431-442.



17. E. Poros E, K. Kurin-Csörgei, I. Szalai, V. Horváth V, M Orbán: Periodic Changes in the Distribution of Species Observed in the Ni²⁺-Histidine Equilibrium Coupled to the BrO₃⁻-SO₃²⁻ pH Oscillator
J. Phys. Chem. A, **2014**, *118*, 6749-6756.
18. B. Dúzs, I. Lagzi, I. Szalai: Propagating fronts and morphological instabilities in a precipitation reaction
Langmuir, **2014**, *30*, 5460-5465.
19. E. Poros, K. Kurin-Csörgei, I. Szalai, Gy. Rábai, M. Orbán: pH-oscillations in the bromate–sulfite reaction in semibatch and in gel-fed batch reactors
Chaos, **2015**, *25*, 064602.