

Bírálat Dr. Rábai József „MTA Doktora” fokozatért benyújtott

„A fluoros kémia születése és fejlődése”

c. értekezéséről

Dr. Rábai József – Horváth István Tamás professzor vezetésével – 1991-től kapcsolódott be a fluororganikus kémia egy különleges szegmensébe, amikor mára kialakították a „(per)fluortartalmú vegyületet magába foglaló kétfázisú rendszer” koncepció önálló területét. A kutatások az EXXON Központi Kutatólaboratóriumában kezdődtek a metán metanollá történő szelektív oxidációja feladat kapcsán, ami 10-15 év alatt fokozatosan vezetett a fent említett diszciplína megerősödéséhez és nemzetközi elismertségéhez.

A poli-ill. perfluorvegyületek kiválóan alkalmasak arra, hogy eleve, vagy lehűlésre, vagy nyomáscsökkenésre olyan kétfázisú rendszereket szolgáltatassanak, amelyek valamilyen technológiai szempontból előnyt jelentenek, pl. a drága katalizátor a fluortartalmú fázisban marad és az így könnyen újrahasználható. A vegyülettípusok megválasztása, a fluorozottság foka és helye befolyásolja az elegyedési/szétválási tulajdonságokat, ami egyfajta tudatos tervezést („fine tuning”-ot) igényel. Az elmondottak értelmében a fluorvegyületek egyik fázisként alkalmazó tudományágnak környezetbarát vonatkozása is van, bár a fluorvegyületek toxicitása és lebomlása egy külön kérdéskör lehet.

Az ipari projekthez kapcsolódó, a legtöbbször titokban, esetenként „illegálisan” végzett kutatás mindenképp időszerűnek mondható, amely teljes mértékben alkalmas arra, hogy „nagydoktori” fokozat elnyeréséért írt értekezés alapjául szolgáljon. A közel két évtized alatt Rábai József fokozatosan önálló kutatóvá nőtte ki magát a témában, amely más részterületekhez is így pl. a foszfor- vagy kénorganikus kémiához is kapcsolódik.

Rábai József eredményei a következőkben foglalhatók össze:

1. A korai stádiumban (1991-93) két polifluorozott foszfint, három fluortartalmú fém-ftalocianint, ill. egy Fe(III) porfirin-származékot, továbbá fluorozott trietil-foszfít ill. trietil-foszfát származékokat tett hozzáférhetővé, melyeket –többek között- olyan hidroformilezési reakciókban hasznosítottak, ahol az aldehid keletkezése után a reakcióelegy két fázisra válik szét és így a drága Rh-katalizátor visszaforgatható.
2. Fluortartalmú amfileket, köztük fluortartalmú diamidofoszfátokat, iodo-perfluoralkil acetátot és perfluoralkilpropanolt szintetizált, melyek speciális tenzidként jönnek számításba.
3. Fogalmakat vezetett be a fluortartalmú, ill. perfluorozott vegyületek jellemzésére. Egy anyag affinitását a fluortartalmú közeg iránt a „fluorofilitás” fejezi ki, míg egy

referencia vegyülethez való viszonyítást a – nem túl szerencsés ill. magyaros (l. később) –fluorossággal fejezték ki.

4. Fluorofill vegyületként perfluoralkilezett aromás vegyületeket, perfluoralkilmetilaminokat, perfluoralkil-etiléneket, perfluoralkil-propiléneket, perfluoralkil-propanolt és perfluoralkil-propilamint állított elő, valamint új Mitsunobu módszert dolgozott ki fluorozott aminok előállítására. Továbbá fluorozott 1-feniletilaminokat hasznosított újszerű rezolválásokban. Végül fluortartalmú étereket és ketálokat tett hozzáférhetővé.

Rábai József elért eredményeit nagyra tartom, amelyekkel jelentősen gyarapította az alkalmazott szerves kémiai tudományát. Eredményeit 22 nemzetközi folyóiratcikkben és két könyvben publikálta. Az egyik könyvben 1 fejezet, a másikban 5 fejezet szerzője ill. társszerzője. A cikkek rangos nemzetközi periodikákban jelentek meg, amelyek közül a *Science*, *Organic Letters*, *J. Am. Chem. Soc.*, *New J. Chem.*, *Synthesis*, *Synlett*, *Tetrahedron Lett.* és *J. Fluorine Chem.* folyóiratok emelhetők ki.

Az értekezés minden tekintetben formabontó és ezt sajnos nem pozitív értelemben gondolom. Teljes mértékben összekeveredik az irodalmi és a saját rész. Kétségtelen, hogy Rábai József a téma egyik úttörője, mégis külön lehetett volna választani az eredményeket, pl. a fluororganikus kémia alapjait és más kutatók kapcsolódó eredményeit a saját eredményektől. Csak kapkodja az ember a fejét, hogy melyik referencia tartozik Jelölthöz, és melyik más szerzőkhöz. Ráadásul saját eredményeinek ismertetésekor is többes szám 3. személyben beszél: „vizsgálták” ill. „megvizsgálták” (81. 1.1.2). Másrészt több helyütt is megkérdőjelezhető a logikai felépítés helyessége. Ezt legjobban az „1.1 A fluoros kétfázisú koncepció” és az „1.2 Folyadék-folyadék kétfázisú rendszerek” c. fejezetek inkonzisztenciája mutatja. Az 1.1 fejezetben ígért koncepció az 1.2 fejezetben van leírva (11 lap, alulról a 8. sortól), de más tekintetben is átfednek. A 7 l. alján a ródium toluolból történő extrakciójára ígér példát, erre a 8. l. tetején „in medias res” perfluoralkilezésre és fluoros foszfin előállítására ad részletes receptet. Tehát témájában nem odavágó dologról beszél, ráadásul nem várnánk sem az Irodalmi részben, sem a saját eredmények ismertetése során részletes recepteket. Helyenként a címek is nagyon furák: Pl. 1.1.3 EP 0633062 B1(1995) utána külön sorban: „Fluoros többfázisú katalizátor vagy reagens-rendszerek...”. Vagy számomra idegen test a „2. Fluoros Kémiai Kézikönyv 2004”, „2.1 Bevezetés”, „2.2 Könyvszemle” rész is. Fenti elemzésemet nem kívánom tovább vinni, de annyit még meg kell említenem, hogy igen fura a 20. lapon kezdődő review cikkrészlet lefényképezett bemutatása, vagy a tézisfüzet 13. lapján a Synthesis cikk fejléc bekopizása.

A vegyületszámozással is gond van. A 28. lapon 1-59 számozású képletgyűjtemény szerepel. Amúgy a 33. lapig nincs vegyületszámozás. A 33. lapon két foszforsavszármazék „a”-val és „b”-vel van jelölve (az ábra egyébként 2. ábraként és nem 6. ábraként van hivatkozva a szövegben), majd megkezdődik a vegyületek számozása. Miért nincs az elejétől képletszámozás, ill. miért van 2 féle számozás?

Már szólottam a szokásos tagozódás hiányáról. Külön kísérletek részletes leírását sem találni az értekezésben, amit –tézisszerű dolgozatnál– el is tudok fogadni, de legalább a 22 folyóiratcikk közül a legfontosabbakat be illett volna tenni kicsinyített fénymásolat formájában. Környezetvédelmi okok nem indokolhatják az anyagtakarékosságot egy akadémiai doktori értekezés esetén. Összességében elmondható, hogy amilyen örömmel és kíváncsisággal vettem a kezembe Rábai József értekezését, olyan hamar le is lombozódtam a tartalom és a forma éles kontrasztja miatt. Ez a rendkívül értékes munka sokkal többet érdemelt volna!

Amúgy a téziszfüzetben sem tézisszerűen vannak megfogalmazva az eredmények. A dolgozat nem tartalmaz összefoglalást.

Még egy problémát szeretnék felvetni. Az én fülemet sérti a „fluoros”, a „fluorosság”, stb. kifejezések használata. Különösen a „fluoros oldószer/vegyület/fázis/lánc módszer/extrakció/desztilláció/kristályosítás/kötőelem”, stb. összetételekben, vagyis jelzőként. Gondoljuk meg, hogy ilyen más atomok esetében sem létezik, tehát nincs kénes, foszforos vagy klóros oldószer stb. Bizonyosan egyetértene ezzel Lőrincze Lajos vagy Grétsy László. Véleményem szerint a feltalálók/bevezetők felelőssége, ha ilyen vitatható kifejezések elterjednek, ráadásul angolul is. De már elterjedtek és egy fecske nem csinál tavaszt...

Visszatérve a lényeghez, érdekesek a fluortartalmú alkoxicsoportokat tartalmazó diamid monofoszfátok, melyek helytelenül „dimorfolino-foszfát”-nak neveztetnek a 33. lapon. Hogy történt ezek előállítása, ill. a különböző helyen fluorozott alkohol-komponens szintézise?

Ugyanezen a lapon egy fluorozott alkohol (**1**) butil-szubsztitúciót és eliminációt szenved BuLi hatására. Hogy megy a reakció? Hogyan lesz a **2**-ből **3**, ill. **5**-ből **6**? Ezek nem mindenki számára triviális lépések, éppen ezért jó lett volna ismertetni. Ismét felmerül, hogy az irodalmi részben mennyire kívánatos lett volna a fluororganikus kémia alapjait összefoglalni. Lehet, hogy érdemes lett volna a Mitsunobu reakciókat egy fejezetben tárgyalni.

„A hatékony elválasztási műveletek” c. fejezet értékes része az értekezésnek, habár a „fluoros” jelző fülsértő használata levon az értékéből.

A fluor-tartalmú vegyületek komoly környezetvédelmi problémát vetnek fel. Jelölt maga is írja a 18. lapon, hogy „A perfluoralkinek kémiai stabilitása megakadályozza, hogy azok a környezetben belátható időn belül lebomoljanak,...”. Lehet-e valamit tudnia különféle fluorvegyületek degradációjáról? Hogyan befolyásolja azt, hogy hol és mennyire fluorozott a molekula? Horváth prof elképzelése, hogy genetikailag manipulált „fluoros láncokat” fogyasztó mikroorganizmusokat kellene kitenyészteni mennyire realisztikus?

Összességében megállapítható, hogy Dr. Rábai József eredményei, amiket az elmúlt 20 évben ért el a fluorvegyületek előállítása és hasznosítása területén messzemenően megfelelnek egy MTA Doktori fokozat elvárásainak. Azonban a benyújtott értekezés nem mondható egy kiforrott és érett munkának, hanem egy meglehetősen hevenyészett (inkoherens) összeállítás. Jelenleg a DSc fokozat megszerzésének – a megfelelő szintű tudományos eredmények megléte mellett - követelménye az eredmények dolgozatban való összefoglalása is. Másrészt egy értekezés olyan célt is szolgál, hogy kiderüljön belőle mi a Jelölt saját munkája. Ez Rábai József esetében elég jól megállapítható, csupán az első publikációk tekintetében nem egyértelmű. Harmadrészt, minden disszertáció dokumentum marad az utókor számára az MTA könyvtárában. Jelen formában ez a dolgozat archiválásra alkalmatlan. A beadott tézisgyűjtemény talán egy kicsit informatívabb a dolgozatnál, de erre vonatkozóan is fennáll az értekezésre vonatkozó kritika.

Néhány hónapos töprengés után is úgy érzem, hogy a DSc fokozat odaítélésekor nem lehet eltekinteni attól hogy egy doktori értekezés formailag is megfelelő színvonalú legyen. Szerintem tehát magától értetődő az átdolgozás szükségessége a cím odaítélése előtt. Ez azonban csak a saját véleményem és azt javasolom, hogy felvetésemet egy lehetőségként fontolja meg a bírálóbizottság. Megjegyzem, hogy nem igazán értem hogy adhattak ki bírálatra egy ilyen, eredményeit és formáját tekintve hihetetlen kontrasztot mutató dolgozatot. Egy megfelelően revideált disszertáció (esetleg tézisgyűjtemény) benyújtása után az elért eredmények birtokában – sikeres védelem esetén - Rábai József feltétlenül megérdemli az „MTA Doktora” címet.

Budapest. 2010. Október. 14.

Dr. Keglevich György