BÍRÁLÓI VÉLEMÉNY

Dr. Lónyi Ferenc

'' Katalitikusan aktív centrumok zeolitokban: szerkezet és aktivitás ''

című MTA Doktori értekezéséről

Bíráló: Dr. Kaizer József, az MTA Doktora

A heterogén katalitikus eljárásoknak a mai napig kiemelkedő szerepe van az üzemanyag- és energiaiparban, valamint a károsanyag-kibocsájtáson keresztül a környezetvédelemben is. A petrolkémiai eljárásokban előszeretettel alkalmazzák a zeolit alapú katalizátorokat, amelyek helyes megválasztásával, illetve szerkezetük célzott módosításával nagyhatékonyságú és nagyszelektivitású krakkolási és izomerizációs folyamatok valósíthatóak meg. Annak ellenére, hogy a fenti eljárások kiterjedt irodalommal rendelkeznek, a katalitikus centrumok koordinációs övezetében lejátszódó folyamatok mechanizmusa, valamint az aktív centrumok spektroszkópiai viselkedése még a mai napig sem tisztázott teljes mértékben. Az irodalmi adatok alapján a redoxi tulajdonságú átmenetifém centrumokat tartalmazó zeolitkatalizátorok alkalmazása ígéretesnek tűnik a fosszilis energiahordozók magas hőmérsékletű égésekor keletkező nitrogén-oxidok eliminálására is. Ezen folyamatok olyan redukciós eljárásokon alapulnak, ahol a nitrogén-oxidok nitrogénné történő átalakulása szén-monoxid/szénhidrogén, ammónia vagy szénhidrogénes, szelektív, katalitikus redukcióval valósul meg.

A fentiek alapján – már az értekezés részletes értékelése előtt – leszögezhető, hogy Lónyi Ferenc értekezésének témája fontos és messzemenően időszerű.

A jelölt kiterjedt vizsgálatokat végzett a Brönsted-sav centrumokat tartalmazó zeolitok (H-zeolitok) saverősségének meghatározása céljából. Megállapította, hogy a különböző H-zeolitok eltérő protonaffinitású bázisokkal szemben különböző relatív savasságot mutatnak, valamint, hogy a H-zeolit - N_2 kölcsönhatás IR spektroszkópiai vizsgálatával jól leírhatóak a szerkezet és a valódi saverősség összefüggései is. Az így szerzett eredményeket felhasználva értékes összefüggéseket tárt fel a H-zeolitok savassága és az alkánokkal szembeni katalitikus aktivitása között, továbbá javaslatot tett az aktiválási folyamat mechanizmusára.

A bifunkciós H-zeolit/Pt összetételű katalitikus rendszerek tanulmányozásán keresztül arra a következtetésre jutott, hogy a katalizátorok aktivitása és szelektivitása (hidroizomerizáció) a platina koncentrációjához, illetve kationos (Pt^+) formájához rendelhető.

Az értekezés rendkívül értékes részét képezik a szelektív katalitikus NO redukcióval kapcsolatos eredmények. Az elvégzett kísérletek segítségével azonosították a Co- és/vagy In-

zeolit katalizátorokon kialakuló aktív és inaktív helyeket, valamint szerepüket a CH_4/NO-SCR reakciókban. A kapott információk birtokában javaslatot tettek a reakciók mechanizmusára.

Dr. Lónyi Ferenc munkájának eredményességét, a felsorolás teljességének igénye nélkül, 60 tudományos közlemény (tudományos cikkek nemzetközi, valamint hazai idegen és magyar nyelvű folyóiratokban (45/4/4), könyvfejezetek (1), konferencia kiadványok (6)), valamint az ezekre kapott közel 981 független hivatkozás jelzi.

A disszertáció érdemi része 146 oldalt tesz ki, aminek az alapját 21 eredeti és 3 egyéb (könyvfejezet illetve konferencia kötet) közlemény adja. Utóbbiak mindegyikében első vagy levelezős szerző Dr. Lónyi Péter, míg az eredeti közlemények közül hétben levelező szerző és további öt közlemény első, vagy utolsó szerzője. Ezen cikkek többsége jelentős nemzetközi folyóiratokban jelent meg (*J. Phys. Chem. B* és *C*; *Appl. Catal. B*, *Micropor. Mesopor. Mater*....), a 21 közlemény összesítetett impakt faktora 65,4.

A disszertáció megfelel az MTA Doktori értekezés formai követelményeinek; szerkesztése jól áttekinthető, felépítése logikus, apróbb, figyelmetlenségből eredő hiba csak elvétve fordul elő. A kémiai elnevezések és képletek helyes írásmódja dicséretes. Külön ki kell emelni a dolgozat szép külalakját.

A dolgozat három oldalas bevezetése célkitűzésnek is tekinthető, amely rész világosan megfogalmazza a vizsgálódás tárgyát, irányát. Ezt a részt követi a 21 oldalas irodalmi áttekintés, amelyben a jelölt összefoglalja a munkájával kapcsolatos szakmai előzményeket. Ez jelentős mértékben megkönnyíti az olvasó számára a disszertációban bemutatott munka feldolgozását, és az elért eredmények értékelését. A dolgozat 4. fejezete 11 oldalon keresztül a kísérleti körülményeket és az alkalmazott vizsgálati módszereket ismerteti. A kísérleti eredmények és értékelése közel 103 oldalon, 3 alfejezeten keresztül kerül bemutatásra. A vizsgálatok eredményeiből a katalizátorok szerkezetére és aktivitására vonatkozólag helyes következtetésekre jutott, és a konklúzióit az irodalomból vett meggyőző példák illusztrálásával is kellőképpen alátámasztott. Az értekezés 4 oldalas Összefoglalóval és 306 irodalmi hivatkozással zárul (2/3-a 2000 előtti). Az Összefoglaló gyakorlatilag a tézisek felsorolását jelenti, melynek minden pontját új tudományos eredményként fogadom el.

Az értekezéssel kapcsolatos észrevételeim, megjegyzéseim és kérdéseim a következők:

1. A katalizátorok aktív centrumának tulajdonságai (savasság) és a katalitikus aktivitásuk közötti összefüggések értelmezése egy-két jól megszerkesztett ábrával, grafikonnal világosabb és jobban áttekinthetőbb lett volna.

2. A dolgozat egészére jellemző, hogy a mérési adatok (TOF, konverzió…) esetében a hibák nincsenek feltüntetve.

3. A hexánadszorpciós méréseket kiterjesztették-e további homológ származékokra, illetve elágazó szénhidrogénekre? Milyen összefüggés várható pl. a szénatomszám és az IR adatok alapján?

4. Kontroll-kísérletként történtek-e IR vizsgálatok az alkének és a H-Zeolit katalizátor centrumai közötti kölcsönhatásokra nézve? Ha igen, akkor milyen mértékben konkurál az alkán az alkénnel?

5. A 4. táblázatban a különböző katalizátorokra meghatározott krakk és izomerizációs termékek aránya hogyan változik az idő függvényében? Ezek alapján milyen következtetések vonhatóak le a vizsgált katalizátorok szelektivitására nézve?

6. Mennyire megbízható a tömegspektrometriás mennyiségmeghatározás?

7. Az Indium véleményem szerint nem átmeneti fém. Milyen szempontok szerint történt az In és Co elemek kiválasztása az NO-redukciós kísérletek során? A redoxpotenciál értékek alapján tervezhetőek-e a fenti rendszerek?

A fenti kérdések, kifogások, észrevételek, megjegyzések nem csökkentik Dr. Lónyi Ferenc munkájának értékeit. Az értekezés elméleti és gyakorlati szempontból egyaránt fontos kérdésekkel foglalkozik, többnyire tekintélyes folyóiratokban megjelent közleményeken alapul, színvonalas eredményeket tartalmaz. Az abban foglalt téziseket elfogadom, az eredményeket az MTA doktora cím elnyeréséhez elegendőnek tartom, a nyilvános védésre bocsátást határozottan javaslom.

Veszprém, 2017-02-15.

Dr. Kaizer József

az MTA doktora