

Vélemény

Lukács Dávid

„Molekuláris és heterogén vízoxidációs katalízis réz-peptid komplexekkel” című PhD értekezéséről

Lukács Dávid munkáját az Energiatudományi Kutatóközpontban végezte, dr. Pap József Sándor és dr. Valicsek Zsolt (PE) témavezetésével. A dolgozat alapját képező kutatás során réz-oligopeptidek széleskörű elektrokémiai, tömegspektrometriás, röntgenfotoelektron-spektroszkópiás, potenciometriás, pásztázó elektronmikroszkópiás és energiadiszipatív röntgenspektroszkópiás jellemzésével és vízoxidációs katalizátorként való alkalmazhatóságuk feltárásával foglalkozott. A témaválasztás mindenképpen időszerű: az energiátárolás hatékony megoldása napjaink kulcskérdése.

A kísérletek során ligandumként 2,3-diaminopropionsavat mint háromfunkciós építőelemet és különböző aminosavakat tartalmazó, valamint lineáris és makrociklusos peptidek szolgáltak, melyek szerkezettől függően egy vagy több rézion megkötésére voltak képesek. A ligandumok rézkomplexeit részletesen jellemezte különféle elektrokémiai módszerekkel, vizsgálta viselkedésük pH-függését.

A 2,3-diaminopropionsavhoz kapcsolt két glicint és egy aszparaginsavat tartalmazó ligandum esetén bizonyította a rézkomplex homogén katalizátorként való működését és a puffer foszfátionjának inhibíciós hatását. A H-Gly-DAP(H-Gly)-DAP(H-Gly-DAP(H-Gly))-Gly-NH₂ ligandum komplexei jelenlétében a megkötött rézionok számától függően egycentrumú, majd kétcentrumú kooperatív katalízist mutatott ki, az utóbbi esetben jelentős teljesítménynövekedést észlelt. Rávilágított a puffer befolyásoló hatására különböző elágazó láncú és makrociklusos peptidek rézkomplexei esetében is. Tripeptidek rézkomplexeinek vizsgálatával megállapította, hogy puffertól és pH-tól függően homogén illetve heterogén úton is történhet a katalízis.

Az eredmények alapján három közlemény és egy összefoglaló közlemény jelent meg referált nemzetközi folyóiratokban a dolgozat összeállításáig, melyek közül kettőben a Jelölt az első szerző. Így a KKDI követelményeit teljesíti, sőt túlteszi.

A dolgozat az elővételre benyújtott változathoz képest jelentős átalakuláson esett át. Lukács Dávid mind az irodalmi összefoglalót, mind a saját kísérletek tárgyalását több ponton

is kiegészítette, pl. a trisz-bipiridil-ruténium komplex vízbontásban játszott szerepének részletezésével, a vízelektrolízisre ipari méretekben használt cellák bemutatásával. Részletesebben tárgyalja a homogén- és heterogén vízoxidációs katalizátorokat és a reakciók mechanizmusát. További változás a részletes rövidítésjegyzék beiktatása, valamint a két fejezetre tagolt metodikai részek összeolvasztása. A tézispontok megfogalmazása is változott, az egyes szám első személy jobban megfelel egy doktori dolgozatban elvárt formának és a megszövegezés is világosabb lett.

Bizonyos információk, pl. a mások által vizsgált katalizátorokkal kapcsolatos összefoglaló táblázatok a Függelékbe kerültek. Sajnálom viszont, hogy a Függelékben jelenik meg az eredeti dolgozat III.6 és III.7 ábrája is. Egy szerkezeti képlet, még ha esetleg csak feltételezett is, sokkal többet mond, mint csupán egy rövidítés. A képlet persze most is része a dolgozatnak, viszont némi lapozgatást igényel, ha az olvasó fel akarja idézni, miről is van szó.

A „Bevezetés” című fejezet a tulajdonképpeni irodalmi összefoglaló, mely a témához kapcsolódó előzményeket nem csupán áttekinti, hanem ténylegesen értékeli is. Több mint 160 korábbi közleményt dolgoz fel, a teljes dolgozat hivatkozásainak száma 227. Az eredmények értékelését a tézispontoknak megfelelő sorrendben mutatja be. Az egyes fejezetek jelentős mennyiségű, átgondolt kísérleti munkáról számolnak be. Az ábrák szépek, jól megtervezettek, segítenek az olvasottak megértésében. A mérési eredmények alapján levont következtetések megalapozottak.

A Jelölt az előbírálóban kifogásolt formai és apróbb tartalmi hibákat is javította. Az új részekkel kapcsolatban egy tartalmi és egy nyelvi megjegyzésem van:

Az 1.4 ábrán kicsit „sántít” a zöld keretbe foglalt mechanizmus-részlet, mert valójában két Ru-gyökanyionból visszakupunk egy $\text{Ru(II)}[(\text{bipy})_3]^{2+}$ komplexet, egy pedig protonálódik. Ezt az ábra nem adja vissza elég érthetően.

Ügyelni kell az ami/amely használatára, ezek nem mindig szerepelnek helyesen. (Főnévvel meg nem nevezett dologra ami vonatkozó névmással utalunk vissza, főnévvel megnevezett dologra pedig amellyel. Ld. nyelvmuvelo.hu)

A dolgozat olvasása során a következő kérdés merült fel bennem:

A kísérleti eredmények alapján mind a ligandumok hozzáférhetőségét, mind katalitikus tulajdonságaikat figyelembe véve milyen úton haladna tovább egy hatékony vízoxidációs katalizátor kifejlesztéséhez?

Összefoglalva elmondható, hogy egy érdekes eredményeket és imponáló kísérleti munkát bemutató, logikusan felépített dolgozatról van szó. A tézispontokban felsoroltakat új tudományos eredményként elfogadom. Sikeres védés esetén a PhD fokozat odaítélését mindenképpen támogatom.

Veszprém, 2023. július 10.

Skodáné dr. Földes Rita
egyetemi tanár