

## Opponensi vélemény

Szakács Szabolcs „**Polimer és ionos folyadék-tartalmú membránok biológiai eltömődésének vizsgálata mikrobiális üzemanyagcellában**” c. PhD értékezéséről

Az utóbbi évtizedekben világszerte, de speciálisan Európában a felhalmozott környezeti problémák, valamint a zöldátmeneti gazdaság elterjedése miatt a mikrobiális energiacella (MÜC) technológia újra intenzív szakaszba lépett, hiszen a megtermelt energia nemcsak zöld, de jelentősen hozzájárul a problémák hatékony kezeléséhez is. A MÜC technológia nem új, de az elterjedésének egyik nagy gátja, az alacsony feszültség és maga az élő mikroorganizmus(ok) „szeszélyessége” pl. szaporodás, biofilm képződés stb. Ezek adott esetben előnyt is jelenhetnek, de sok esetben technológiai kihívások pl. az elektród felületén lévő biofilm képződés növeli az elektron átadási hatékonyságot, de a membrán felületén kialakuló már a membrán eltömődését okozhatják. Ennek alapján megállapítom, hogy Szakács Szabolcs PhD kutatási témája, amely a különböző membránok biológiai eltömődésének vizsgálatával foglalkozik mikrobiális üzemanyagcellában, rendkívül aktuális és sikeres megvalósítása kétségkívül hozzájárul a MÜC technológia alkalmazásával kapcsolatos kihívások leküzdéséhez. A dolgozat, a témával foglalkozó ország egyik legkiválóbb tudományos, szakmai műhelyében született, és ezt megerősítették a megjelent és a dolgozat tartalmát képező magas rangú publikációk is. Örömmel tapasztaltam, hogy a műhely vita során felmerült észrevételek, vélemények beépítésre kerültek a végső formába. Továbbá a bírálatom során a Doktori Iskola által kiadott követelmények alapján jártam el.

### *Alaki, formai értékelés*

A munkahelyi vitára benyújtott dolgozat összesen 106 oldalból áll és tartalmazza azon fejezeteket (magyar, angol és japán nyelvű kivonatok, rövidítésjegyzék, bevezetés, irodalmi áttekintés, célkitűzések, anyagok és módszerek, eredmények és értékelésük, összefoglalás, summary, új tudományos eredmények, novel scientific results, irodalomjegyzék, publikációs lista, köszönetnyilvánítás), amelyeket a Pannon Egyetem Vegyészmérnöki- és Anyagtudományok Doktori Iskola követelt. A dolgozatban való eligazodásban, navigálásban a tartalomjegyzék és rövidítésjegyzék segíti az Olvasókat. Az egyes fejezetekben lévő információk megértéséhez, szemléltetéséhez különböző képletek, ábrák és táblázatok is hozzájárulnak. A dolgozat nyelvezete gördülékeny és megfelelő, a megfogalmazások érthetőek és követhetőek. A Szerző igyekezete ellenére még mindig található benne elütések, sajtóhibák stb., helyenként túlságosan hosszú és/vagy kör-, vagy több értelmű mondatok. Szintén néhány helyen a leírt szöveg inkább egy szóbeli beszédhez hasonlatos, mint egy írásbeli PhD disszertációhoz. Az ábrák címei néhol rövidre és információ szegényesre sikerültek, így egy kis gondolkodásra késztették az Olvasót. Továbbá szokatlan, hogy a dolgozat főfejezetei (bevezetés, célkitűzés, irodalmi áttekintés stb.) nem új oldalon kezdődnek.

### *Tartalmi szempontok*

A Jelölt a Bevezetés c. fejezetben emelte ki a mikrobiális üzemanyagcella felépítését, a katódtérben és anódtérben lezajló biokémiai, valamint a membránon történő (főleg az oxigén transzfer) folyamatokat, hatásokat. Megemlítsre került az eltömődési folyamat, amelynek hatása lehet az oxigén diffúziójára, ezáltal a cella teljesítményére.

A témához kapcsolódó hazai és nemzetközi szakirodalomban található kutatási eredményeket a Jelölt az Irodalmi áttekintés c. fejezetben foglalta össze. Részletesen elemző módon, megfelelő kritikákkal tárgyalta a cellában lezajló kémiai reakciókat, az elektrokémiai folyamatokat, a membránon lezajló

proton és oxigén transzportálását, az exoelektrogén (extracelluláris elektron termelő) mikroorganizmusokat, elektron átadási mechanizmusokat, a membránokat, továbbá a cellulózoldódást és ionogél képződését, valamint a biológiai eltömődést. Ezek az információk fontosak és jó alapot szolgálnak a Jelölt által kiválasztott kutatási téma sikeres kidolgozásához. Örömmel tapasztaltam, hogy a Doktorjelölt a műhely vitán elhangzott tanácsokat elfogadva, a szakirodalom feldolgozásának utolsó alfejezetét (Membránok biológiai eltömődése a MÜC-ben) bővítette és új információkkal egészítette ki. Érdemes volna további információkat közölni a biofilm rétegzésének dinamikájáról, kialakulásának befolyásoló tényezőiről, a mikrobiális energiacellában lezajló anyagátadására gyakorolt hatásokról, valamint a cellulózoldódással és ionogél képződéssel kapcsolódó tudományos eredményekről.

A Célkitűzés c. fejezetben a Jelölt fő céljaként szerepel a kevert kultúrákkal inokulált két-kamrás mikrobiális üzemanyag cellák vizsgálata, különösen a biológiai eltömődésének kialakulására és hatására. Szintén megfogalmazásra került célként az üzemanyag cellákban lezajló anyagátadási folyamatok jellemzése az acetát szubsztrátum alkalmazásával, valamint új biopolimer (cellulóz-bázisú) ionogél membrán fejlesztése és alkalmazása a mikrobiális üzemanyagcellában a biológiai eltömődés visszaszorításában. Ezek a célok ambiciózusak, de megalapozottak, és elérésükkel jelentősen hozzájárulnak a kétkamrás üzemanyag cellák fejlesztéséhez és alkalmazásához. A megfogalmazásuk azonban kicsit pongyola és nehezen érthető.

Az Anyagok és módszerek c. fejezetben a Jelölt korrekten, követhetően, reprodukálhatóan leírta a cellák kialakítását, az alkalmazandó membránokat és fő jellemzőiket, az ionogél membrán készítését, az anyagátadási vizsgálatokat, az elektrokémiai nyomon követését, a belső ellenállást, a ciklikus voltammetriát és jellemzését, a mikrobakonzorcium analízisét, a membrán ellenállást, az elektronmikroszkópos képalkotást (SEM) stb. A kiválasztott eljárások, vizsgálati módszerek korszerűek, néhol egyediek és messzemenően szolgálják a kitűzött célok elérését.

A PhD kutatómunkája során kapott eredményeket az Eredmények és értékelésük c. fejezetben mutatta be. A Jelölt először két membrán (Cseh Tudományos Akadémia Makromolekuláris Kémiai Kutatóintézet által kifejlesztett PSEBS-SU22 és Nafion-115) alkalmazásával hasonlította össze a két MÜC energia kihozatalát ( $E$ ), Coulombikus hatásfokát ( $CE$ ), fajlagos energia kihozatali sebességét ( $v_E$ ) és oxigén anyagátadási tényezőjét ( $k_o$ ), valamint a mikrobakonzorcium analízisét. Megállapította, hogy a működési hatékonyság szempontjából ( $E$  és  $CE$ ) a két membrán alkalmazása mutatott különbséget 10 mM nagyobb szubsztrátum koncentráció esetén, a  $v_E$  esetén azonban teljesen ellentétes tendenciát mutatott. Szignifikáns különbség tapasztalható a ciklikus voltammonogramok ( $CV$ ) között is. Továbbá megállapította, hogy az inokulum minőségének nagyobb hatása van a membránon kialakult biofilm mikrobiológiai összetétele szempontjából, mint a membrán anyagának. A második kísérleti sorozatban a Jelölt további négy kereskedelmi membránt (két anion-cserélő AMHPES és AMHPP, valamint két kation-cserélő CMHPES és CMHPP) vont be a vizsgálatokba. Három szubsztrátum koncentrációt (2,15 mM, 4,3 mM és 8,6 mM acetát szubsztrátum) alkalmazott. Megállapította, hogy  $c_{Ac}=2,15$  mM szubsztrátum koncentrációnál kimutathatók a  $CE$  és  $v_E$  értékek szignifikáns különbségei a kation-cserélő és anion-cserélő membránok között, míg 4,3 mM szubsztrátum koncentrációnál már nem. A biofilmben lévő mikrobakonzorcium analízisével megállapította, hogy a membrán típusának nagyobb hatása van a mikrobiális összetételre, mint a membrán anyagának. Továbbá feltételezte, hogy anaerob mikroorganizmusok elsősorban az anódon, míg az aerobok és fakultatív anaerobok inkább a membrán felületén telepednek meg.

A munkájának harmadik nagy pillére az ionogél membrán (cellulóz-ionos folyadék) megalkotása és vizsgálata volt. A Jelölt munkájában sikerült megfelelő ionogél membránt szintetizálni, amely vizes közegben akár 80 napig is kiváló stabilitást mutatott. Továbbá megállapította, hogy CE és  $v_E$  értékeknek nincs szignifikáns különbsége a két membrán között 2,5 mM szubsztrátum koncentráció mellett. Az ionogél membrán jobb ionvezető képességgel rendelkezik a Nafion-115 membránnál. A két membrán típus hasonló oxigén átadási tényezővel, de az ionogél membrán két nagyságrenddel rosszabb szubsztrátum átadási tényezővel rendelkezik. Az ionogél membrán anódoldali biofilmében *Clostridium termitidis* baktérium nagymértékben fordult elő (23.2%).

Az Összefoglalás (magyarul) és Summary (angolul) c. fejezetekben a Jelölt tömören és megfelelően összegezte az elért eredményeket. Ezen fejezetek teljes mértékben megfelelnek a követelményeknek.

A munka eredményeit a Jelölt 4 tézis pontban foglalta össze, amelyet megjelent publikációval is alátámasztott. Ezeket a téziseket elfogadom a következő megfogalmazási javaslatokkal:

1. Meghatároztam a Cseh Tudományos Akadémia által kifejlesztett PSEBS-SU22 ioncserélő membrán teljesítményét összehasonlítva a Nafion-115 membránnal a kevert kultúras mikrobiális üzemanyagcellák alkalmazásával, valamint értékelttem az egyes membránok felületén kialakult eltömődési (biofouling) rétegek mikrobakonzorcium szintű jellemzőit.
2. Meghatároztam Ralex® kereskedelmi anion- és kationcserélő membránokkal felszerelt mikrobiális üzemanyagcellák működésének elektrokémiai jellemzőit, valamint az anód- és membránfelületi biofilmekben lévő mikrobakonzorciumok összetételét és az egyes membránok anyagátadási tulajdonságait.
3. Módszert dolgoztam ki – szakirodalomban megtalálható mikrokristályos cellulóz oldására alkalmas eljárásra alapozva – a mikrobiális üzemanyagcellában alkalmazható ionogél membrán készítésére, továbbá megvizsgáltam annak stabilitását.
4. Értékeltem a saját fejlesztésű ionogél membrán kevert kultúras mikrobiális üzemanyagcellában történő alkalmazhatóságát és teljesítményét összehasonlítva a Nafion-115 membránnal.

A PhD disszertációhoz tartoznak a magyar és angol nyelvű téziszfüzetek, amelyek az alábbi fejezeteket tartalmazzák: címlap, bevezetés, anyagok és módszerek, új tudományos eredmények, valamint kapcsolódó publikáció. A Bíráló hiányolta az eredmények összefoglaló bemutatását, hiszen vannak olyan eredmények a dolgozatban, amelyek nem kerültek a tézispontokba, de a Doktorjelölt munkája. Még egy megjegyzés, hogy az angol nyelvű téziszfüzet tartalma a magyar nyelvű verzióban is megtalálható.

Kérdéseim a munkával kapcsolatban:

- Az ionogél stabilitásánál csak a kioldódó [BMIM]<sup>+</sup> ion mennyiségét vizsgálta desztillált vizes közegben szobahőmérsékleten. Kérdésem az lenne, hogy ez az eredmény mennyire alkalmas az ionogél valós stabilitásának kimutatására tekintettel a mikrobiális üzemanyag cellában uralkodó körülményekre pl. szubsztrátum, mikrobák és egyéb anyagok jelenléte, pH, hőmérséklet, áramlás stb.
- A dolgozatban megemlítette, hogy ionos folyadékok antimikrobiális/inhibíciós hatással rendelkeznek a mikrobákkal szemben. Ezek mennyire befolyásolják az alkalmazott mikroba konzorcium működését, biofilm képződését és ezáltal a MÜC teljesítményét? Vizsgálták-e ezt a tényezőt?

- Az ionogél membrán szerkezetének és a gél kialakulás folyamatának megismerését jelölte egyik kutatási irányként. Milyen jellegű eredmény(ek)e)t vagy hozzájárulás(ok)at várna el a területen?
- Kipróbálná az Ön által kifejlesztett ionogél membránnal ellátott mikrobiális üzemanyagcellát más szubsztrátummal pl. glükóz, laktóz, anyalúg? Mit gondol, hogyan fog viselkedni?

### **Összefoglalás, nyilatkozat**

Megállapítom, hogy Szakács Szabolcs kutatásaiban elért eredmények értékesek és hozzájárulnak a mikrobiális üzemanyagcellákban lezajló elektrokémiai, anyagátadási és mikrobák által okozandó eltömődési folyamatok megértéséhez, és ezáltal a mikrobiális üzemanyagcella technológiai fejlesztéséhez és alkalmazásához. A benyújtott dolgozat a kritikai véleményeimmel együtt is önálló és PhD szintű mű és alkalmasnak tartom a nyilvános védeésre. Sikeres védeés esetén javaslom a PhD fokozat odaítélését Szakács Szabolcs számára.

Budapest, 2024. december 30.

*Nguyen Duc Quang*  
Dr. Nguyen Duc Quang