

Bírálat

Hell Zoltán: „Heterogén katalizátorok alkalmazása szerves kémiai reakciókban” című doktori értekezéséről.

Kiváló szerves kémikusok mellett a Doktori Tanács engem is felkért bírálónak, gondolom azért, mert kutatási területem a heterogén katalízis. Bizonyára halványabb szerves kémiai tudással vizsgálom a dolgozatot, mint bíráló társaim, és lehet, hogy olyan szemszögből, mely szerves kémikusok számára szokatlan.

Jelölt mintegy 24 ismert szerves kémiai reakciótípust tanulmányozott. A reakciókhoz heterogén katalizátort alkalmazott. Minden reakciótípusnál vizsgálta, milyen hatással vannak a termelésre a reaktáns szubsztituensei, továbbá egy-egy reakciónál különféle oldószerekkel, katalizátor változatokkal és mennyiségekkel és reakcióidőkkel kísérletezett. A reakciók nagy többsége C-C, C-O és C-N kötések kialakítását célozza. A dolgozat bepillantást enged a preparatív szerves kémia változatosságába és szépségébe.

A 121 oldalas dolgozat négy, Jelölt témavezetésével készült, sikeresen megvédett PhD dolgozat anyagára épül. Kivitele szép, nyelvezete világos, érthető. Szerkezete viszont rendhagyó. Nincs irodalmi áttekintés és kísérleti rész. Azaz hogy van. „Előzmények” cím alatt annyi irodalmi áttekintés van ahány reakciótípus. Az egy oldalas „Bevezetés”-ből is nyilvánvaló, hogy a heterogén katalizátorok alkalmazása a szerves kémiában egyáltalán nem különleges, noha lehetnek a szerves kémiának olyan területei, ahol ez szokatlan. Lehet, hogy Jelölt munkájának újdonságát az jelenti, hogy az általa használt heterogén katalizátorokhoz hasonlókat a dolgozatban vizsgált reakciókban eddig nem alkalmaztak. A dolgozat tárgyának körülhatárolására, újdonság tartalmának definiálására alkalmas lehetett volna egy irodalmi áttekintés. A kísérleti rész hiányát is meg lehet magyarázni. Az átalakítás rendre lombikban, az alkalmazott oldószer forráspontján történt. Erről nincs mit írni. A rutin NMR, IR és vékonyréteg kromatográfiás módszereket is elég lehet megemlíteni. A szokásos alapvető katalizátorjellemzők - kémiai és fázisanalízis, fajlagos felület és porozitás- meghatározási módszereit sem kell ezen a szinten ismertetni. Az alkalmazott zeolit savkatalizátorok, bázikus hidrotalcit, vegyes oxid és hordozós fémkatalizátorok bemutatása annak a reakciócsoportnak a leírása előtt történik, melyhez az adott típusú katalizátort alkalmazta. Megjegyzem a katalizátorok jellemzése szükséztavú, erősen támaszkodik szakirodalomból átvett adatokra és kevésbé saját mérésekre.

A heterogén katalitikus eljárás környezeti hatása rendre kisebb, mint az ugyanarra a termékre vezető egyéb ismert eljárásoké. Ezek után az eljárás eredményességét Jelölt jóformán egy mutatóval, a céltermék elért termelésével jellemzi. A doktori értekezésben összefoglalt kutatás nagy részét alkalmazott kutatásnak tekintem. Az NKFIH így definiálja az alkalmazott (vagy ipari) kutatást: „új ismeret szerzésére elsődlegesen meghatározott gyakorlati cél érdekében végzett eredeti vizsgálat”. Jelölt munkája ennek a kritériumnak kétségtelenül kiválóan megfelel. Nagy gyakorlati jelentőségű, ha egy értékes intermediert vagy biológiailag aktív hatóanyagot enyhébb körülmények között, környezetbarát eljárással jó termeléssel lehet

előállítani. Új ismeret, hogy az ismert átalakulásokat az alkalmazott heterogén katalizátorral is ki lehet váltani. Egy új eljárás szabadalmaztatható, hasznosítójának profitot termelhet. Nincs olyan akadémiai állásfoglalás, mely szerint alkalmazott kutatási eredményekre ne lehetne doktori cselekményt alapozni. Azt azért meg kell jegyezni, hogy nem találkoztam találmányi bejelentéssel, mely a dolgozat értékes felismeréseivel kapcsolódna.

A dolgozatban azért találtam olyan részeket is, melyek egyértelműen alapkutatási kérdésekre kísérelnek meg választ adni. Az alapkutatás, definíciója szerint, olyan „kísérleti vagy elméleti munka, amelyet elsősorban a jelenségek vagy megfigyelhető tények háttérével kapcsolatos új ismeretek megszerzésének érdekében folytatnak”. A heterogén katalízisben a háttérismeret megszerzése a katalitikus mechanizmus feltárását jelenti. A katalitikus mechanizmus valószínűsítésének különböző mélységei vannak. A legfelső szint, amikor a termékelegy összetételéből, a termékelegyben kimutatott intermedierekből kísérelünk meg következtetni a lehetséges mechanizmusra. A megismerés mélyebb rétege, amikor a reakciókinetika ismeretében bizonyos feltételezett mechanizmusokat már érvénytelennek tudunk tekinteni. Még mélyrehatóbb megismerés, ha a katalizátor aktív alakulatairól és a reaktánsokból képződő aktivált felületi komplex szerkezetéről is tudunk valamit állítani. És ez még nem a megismerés vége... A dolgozatban négy olyan reakciót találtam, melynél kísérlet történt a reakciómechanizmus leírására. Ilyen a szilárd savval, nevezetesen Ersorb-4a zeolittal katalizált oxa-Pictet-Spengler reakció, a szilárd bázissal, nevezetesen hidrotalcittal katalizált izoxazolszármazék előállítás és nitroaldol-addíció, valamint Cu^{2+} -4A katalizátorral kiváltott oxim-nitril átalakulás. Mindegyik reakciónál Jelölt lényegében a termékelegy analízisére alapozva tesz a mechanizmusra javaslatot. Reakciókinetikai vizsgálatok nem voltak, holott az 1-25 órán át végzett reakciók lefutásának nyomon követése nem biztos, hogy megoldhatatlan feladat lett volna. A reakcióelegy analitikai vizsgálata a reakció lejátszódása során esély adott volna reakció intermedierek kimutatására, a reakciókinetika meghatározására és reakciómechanizmus valószínűsítésre. A katalizátorok aktív alakulatainak megismerésére, például a savasság jellemzésére, valamint adszorbeált felületi képződmények kimutatására sem történt kísérlet. Elismerem, utóbbi nem könnyű feladat, de a heterogén katalízis mégis csak a szilárd felületen lejátszódó átalakulások tudománya. (A katalizátor szemcsék külső felületének savasságát például jól lehet jellemezni a mikropórusok nyílásánál nagyobb bázismolekulák, például piridin, adszorpciójával. Csak a 4A és a Cu^{2+} -4A bázisok jellemzése történt meg CO_2 adszorpcióval.

A teljes dolgozatra érvényes észrevétel, hogy a reakcióelegyek termodinamikai egyensúlyi összetételével nem foglalkozik. A preparatív (vagy izolált) termelésről csak a reakció egyensúlyhoz tartozó termeléssel összevetve lehetne megmondani, hogy viszonylag magas vagy nem. Vízképződéssel kísért egyensúlyi reakciókban a termék képződés a víz eltávolításával, például vízmegkötő anyagok alkalmazásával, növelhető. Vízmegkötő anyagok pozitív hatásának valószínűsítéséhez viszont fontos lett volna tudni a vízmegkötő szer nélkül beálló egyensúlyi összetételt. Úgy találtam, hogy szerves szintéziseknél a termodinamikai egyensúly kérdésével más szerzők sem foglalkoznak. Lehet, hogy ennek van valami oka, amit én nem tudok.

Terjedelmét tekintve a dolgozat mintegy fele, olyan reakciókat tárgyal, melyek során új kötések víz (vagy a Pechmann reakciónál adott esetben etanol) keletkezése közben jönnek létre. A reakciók katalizátorának Jelölt szűkpórusú zeolitokat alkalmazott. Tizenegy kondenzációs reakciónál Ersorb (klinoptilolit) készítményeket használt. Az un. A³ kapcsolásnál (alkin-amin-aldehid reakció propargil aminok előállítására) a Cu²⁺-4A zeolitot, az aldoximok nitrillé alakításánál a Cu²⁺- és a Pd²⁺-4A zeolitot találta a leghatékonyabbnak. Noha a zeolitok víz iránti nagy affinitása jól ismert, azért érdemes lett volna a reakciókörülmények között megkötött víz mennyiségét meghatározni, és ennek ismeretében tárgyalni a vízmegkötés hatását a termelésre.

A kereskedelemben beszerzett Ersorb katalizátorokat klinoptilolitot tartalmazó, hazai, bányászott kőzetből állították elő. Jelentős klinoptilolit-előfordulásokat a 60-as évek elején fedeztek fel a Tokaji-hegységben. A vulkáni eredetű üledékek geokémiai átalakulásával keletkezett riolit tufa kőzetek 30-80 tömeg % klinoptilolitot tartalmaznak vulkáni üveg, montmorillonit, analcim, földpátok és, adott esetben egy másik zeolit, a mordenit mellett. A kőzetből előállított Ersorb márkanévű készítmények 1965-ben jelentek meg és kerültek elsődlegesen adszorbensként és ioncserélőként alkalmazásra. A katalízissal foglalkozók viszonylag hamar felismerték, hogy a kémiai és fázisösszetételében tervezhetően és reprodukálhatóan előállítható szintetikus zeolitok mellett a természetes előfordulású zeolitok katalitikus jelentősége, nem elsősorban szűk mikropórusaik miatt, hanem kémiai és fázisösszetételük esetlegessége miatt, alárendelt. Megismételt eljárással ugyanis mindig közel ugyanolyan szintézis terméket lehet előállítani. A bányászott riolit tufa összetételének változatossága viszont bizonytalanná teszi, hogy ugyanolyan terméket lehet-e gyártani egy bányászott alapanyagból, mint egy máskor, máshol bányászott alapanyagból. Mindezek figyelembevételével különösen fontos, hogy az alkalmas Ersorb katalizátort márkanévén túl mélyrehatóan jellemezzük szerkezetével, kémiai és fázisösszetételével, valamint felületi tulajdonságaival. Az Ersorb adszorbensek röntgen pordiffraktogramja bemutatásra került, de a fázisösszetétel meghatározása nem történt meg. Az Ersorb készítmények izzítási tömegvesztéséből, azaz a vízadszorpciós kapacitásból, ami kevesebb, mint 6 tömeg % (3. táblázat), a becsült klinoptilolit tartalom csak mintegy 30 tömeg %. Mindazonáltal nem kétlem, hogy a katalizátor aktív komponense a klinoptilolit.

Jelölt nem „katalitikus mennyiségű” mikropórusos zeolitot használt a reakciókhoz. Ezt a 19. oldalon a katalizátor olcsósága és visszanyerhetősége miatt tartja elnézhető körülménynek. Nem kellene, hogy az olcsóság és a visszanyerhetőség együtt legyen előnyös tulajdonság. Az olcsó katalizátort nem biztos, hogy érdemes visszanyerni. A visszanyerhetőség a drága katalizátorok előnyös tulajdonsága. A 16. oldalon a következőképpen érvel a szűkpórusú zeolitikatalizátor alkalmazása mellett: „...a reakciók gyakorlatilag a katalizátorszemcsék felületén játszódnak le.a kondenzációs típusú reakciókban a mikropórusos zeolitok a reakciókban keletkező kis (szervetlen) molekulák megkötésével segíthetik a reakció előrehaladását.” Kérdezem akkor, hogy miért nem használ legalább annyi Ersorb katalizátort, amennyi alkalmas lehetne a reakcióban keletkező összes víz megkötésére. Az oxazolin származékok szintézisének például 100 %-os átalakulásnál 10 mmol víz keletkezhet (19. oldal). Ugyanakkor az alkalmazott mennyiségű Ersorb-4 (Ca-klinoptilolit) még

szobahőmérsékleten is csak mintegy 2,7 mmol víz megkötésére képes. Valamivel jobb a helyzet a Pictet-Spengler reakciónál ahol a 2,7 mmol-os adszorpciós kapacitás 5 mmol vízre jut (34. oldal). Az oxa-Pictet-Spengler reakciónál viszont 2 mmol vízre 1,66 mmol-os adszorpciós kapacitás jut (38. oldal). A reakció hőmérsékletén a szorpciós kapacitás még kisebb, a vízképződés pedig annyi amennyi. A többi vízképződéses reakciót ebből a szempontból már nem vizsgáltam.

Hogy bírálatom méltányos hosszúságú legyen - mielőtt a tézispontokra térnék - már csak azokkal a reakciókkal foglalkozok, melyeknél Jelölt saját mechanizmusképet vázol fel.

Az oxa-Pictet-Spengler-reakció

Az oxa-Pictet-Spengler reakció tárgyalásánál (35-41 oldal) fejt ki részletesebben, hogy a fenil-etanol származékok kondenzációs reakcióját aldehiddel vagy ketonnal szilárd sav Ersorb-4 váltja ki, de a reakció végbemeneteléhez vízmegkötő képességre is szükség van. Érthető, hogy egy vízképződéssel kísért reakció egyensúlyát a víz elvonásával a terméképződés irányába lehet eltolni. De kérdés, mennyi lehet a tanulmányozott rendszerekben az egyensúlyi termék koncentráció, az egyensúlyi termelés. Érdekes, hogy az aktív KSF/0 jelű, módosított montmorillonit savkatalizátor még 4A zeolit vízmegkötő adszorbens jelenlétében sem indítja el a modellreakciót. Ugyanakkor, a szakirodalom szerint, p-toluolszulfonsav katalizátorral a reakció lejátszatható. Talán nem volt szerencsés összehasonlító katalizátorként a KSF/0-t választani, mert nyilvánvalóan nem elég erős sav a reakció kiváltásához, szemben a vízmegkötő tulajdonságú Ersorb-4 katalizátorral. A katalizátorok relatív sűrűségét savasság vizsgálatok tisztázhatták volna. Kérdés, hogy a zeolit rendelkezésre álló vízadszorpciós kapacitása mellett a modellreakcióban elért 95-97 %-os termelés milyen mértékben tulajdonítható a zeolit vízmegkötő képességének?

Az oxa-Pictet-Spengler reakcióval foglalkozó, 63.-ként hivatkozott cikkben közölt mechanizmus elképzelés szerint a savkatalizátor protonálással aktiválja a keton reaktánst a kondenzációs gyűrűzárás reakcióhoz a fenil-etanollal. Ezt a lépést Jelölt mechanizmusképe is tartalmazza, bár hiányolom a kis + jelet a protonált 4-klór-fenil-aldehid modellreaktáns képletében (21. ábra). Az ismert mechanizmus és jelölt mechanizmusképe között abban van eltérés, hogy az aktivált keton/aldehid hol kapcsolódik a fenil-etanolhoz: a hidroxil csoporthoz, vagy, Jelölt szerint, a 2-(3,4-dimetoxifenil)-etanol fenil csoportjának egy szénatomjához. Akárhova is kapcsolódik a kapott felületi intermedier protonált marad. Az intermedier dehidratálódása és a gyűrűzáródás a protonált felületi intermedierben kell, hogy végbemenjen, ahogy az a 63-as számmal hivatkozott közleményben felvázolt mechanizmusban is van. Jelölt sémája ezeket a lépéseket kihagyja, azonnal eljut a folyadékfázisban kimutatott difenil-metanol intermedierhez, ami a séma szerint látszólag spontán vízvesztéssel izokrománná alakul. A difenil-metanol intermedier a folyadékfázisban akkor tud megjelenni, ha elég hosszú a protonált felületi difenil-metanol intermedier élettartama (elég nagy a koncentrációja), mivel tovább alakulásának sebességi állandója kicsi. Ilyenkor egy adszorpciós-deszorpciós egyensúlyban mindig lesz olyan intermedier képződmény, mely visszaadja protonját a katalizátornak és meg tud jelenni a folyadék termékkelegyen. Jelölt szerencsés volt, hogy a difenil-metanolt ¹H-NMR-el ki tudta mutatni,

ami valóban az izokromán képződés ismert mechanizmusától különböző mechanizmust valószínűsít. Ugyanakkor nem tartom szerencsésnek azt a megfogalmazást miszerint kétféle mechanizmus a reakciólépések számában is különbözne.

Izoxazolszármazékok előállítása

Érdekes eredményre vezetett, amikor a malonsavészter és kettőskötést tartalmazó vegyület, nevezetesen fahéjalkohol reakciójának analógiájára hidrotalcit katalizátor és elemi jód jelenlétében nitroecetsav-etilészter és olefin, nevezetesen 1-hexén reakciójával kísérelt meg Jelölt ciklopropán származékot előállítani. Meglepetéssel tapasztalta, hogy ciklopropán származék helyett izoxazol származékot kapott. A hidrotalcit báziskatalizátor különleges vonása volt, hogy az nitroecetsav-etilésztert nem dimerizálta, mint más bázis, pl. a K_2CO_3 . A jelenségek magyarázatára Jelölt termékelegy összetételére hagyatkozva kísérelt meg mechanizmusképet felvázolni.

A mechanizmuskép központjába a nitril-oxid-ecetsav-etilésztert állította, ami a nitroecetsav-etilészterből könnyen képződhet, például dehidratálódással. Az olefin addíciója a $C\equiv N$ -hármaskötésre egyenes útja az izoxazol képződésnek. Ezt az utat azonban kizárta a lehetséges mechanizmusok közül, mert nem tudott kimutatni nitril-oxid intermediert a termékelegyben illetve annak dimerjét a furoxánt. Nem kellene következtetést alapozni arra, hogy valamit nem tudunk kimutatni a termékelegyben.

Mivel a reakció jód jelenléte nélkül nem játszódott le, nyilvánvaló, hogy a jódnak szerepe van a reakciómechanizmusban. Lehet, hogy aktív intermedier a nitroecetsav-észter jódszármazéka, de ennek képződése is csak feltételezés. Ha képződik is, miként zárható ki a nitril-oxidon keresztül lejátszódó gyűrűzáródás, hiszen az izoxazol termékben eggyel kevesebb oxigén van, mint a reaktánsokban. A reakció valamely fázisában egy oxigént el kell veszítenie a nitroecetsav-etilészternek, vagy a belőle képződő felületi intermediernek.

A nitroaldol-addíció vizsgálata

Jelölt a nitroaldol-addíciós reakcióban hidrotalcit katalizátoron 2-nitroalkoholokat állított elő. Az egyik reaktáns a nitrometán, a másik pedig egy aldehid, többnyire benzaldehid vagy szubsztituált benzaldehid. Jelölt érdeme, hogy olyan 2-nitroalkoholokat is előállított, melyeket a szakirodalom még nem írt le. Tudományos érdekességet viszont az a felismerés jelent, hogy bizonyos szubsztituált aldehidekből nem csak a Henry termék, a 2-nitroalkohol, képződik, hanem dinitropropán származék is. Hogy a szubsztituens hogyan kormányozza a reakciót a dinitropropán képződés irányába, arra nem kapunk választ. Azt viszont megtudjuk, hogy a klasszikus mechanizmus - mely szerint a dinitropropán származék a 2-nitroalkohol dehidratálódásával képződő nitrosztírol intermedieren keresztül keletkezik - nem lehet igaz. Jelölt érve a fentiekhez hasonlóan ismét az, hogy nitrosztírol intermediert nem tudott kimutatni a termékelegyben. (Megjegyzem, hogy a 35. ábra, mely a klasszikus mechanizmust hivatott bemutatni éppen a bázist nem mutatja, mely a nitrometánt deprotonálással aktiválja, és mely protonra a 2-nitroalkohol képződéshez az átalakulási út végén szükség van.)

A klasszikus mechanizmus helyett javasolt mechanizmusban egyszerre játszana szerepet a nitrometán *aci* formája és a deprotonált formája. Utóbbi vélhetően akkor (vagy akkor is) keletkezik, amikor az *aci* forma protonálja a 2-nitroalkoholt. A javasolt mechanizmus szerint

a vízkilépés a protonált alkoholból sztirol képződés nélkül a deprotonált nitrometán anion támadásával egyidejűleg menne végbe. Mi lenne akkor a bázis katalizátor szerepe? Képződik dinitropropán származék 2-nitroalkohol és nitrometán reakciójában katalizátor nélkül is? Nitroetánnal a dinitropropán képződés lassabban ment. Történt kísérlet ebben a reakcióban is sztirol intermedier kimutatására?

Aldoximok átalakítása nitrillé

A nitrilek oximokból katalitikus úton vízelvonással keletkezhetnek. A tanulmányozott rendszerekben elvileg kétféle vízelvonó szer van, a 4A zeolit adszorbens és az acetonitril oldószer, mely acetamiddá alakulva képes H₂O-kémiailag elvonni a rendszerből. Kérdés, hogy dehidratált állapotú katalizátor került-e a reakcióelegybe? A katalizátor a 4A zeolitra impregnált fémsó, előnyösen Pd²⁺- vagy Cu²⁺-só. A benzaldoximból és szubsztituált változataiból nitril mellett több-kevesebb amid is keletkezett, jelezve, hogy az acetonitrilhez hasonlóan a termék benzonitril is reagálhat a még átalakulatlan aldoximmal és amiddá alakulhat. A nagy acetonitril felesleg mellett utóbbi reakciónak többnyire kicsi az esélye.

A mechanizmust illetően Jelölt azt a kérdést tette fel magának, hogy a reakció konzekutív módon, oxim-dehidratálódás, nitril-hidrolízis lépésekben játszódik-e le, vagy koncertikusan, azaz oly módon, hogy a nitril és az amid egyetlen közti termékből keletkezik. A báziskatalizált (a 4A molekulaszita gyenge bázis) hidrolízis lépés lehetőségét azzal zárta ki, hogy zeolit, víz és nitrilek elegyét forralva nem tapasztalt amidképződést. Kérdés, hogy a zeolit dehidratált állapotban került alkalmazásra, illetve hogy a rendszer több vizet tartalmazott-e, mint a zeolit adszorpciós kapacitása? Ha mindez kellően dokumentálható, megerősítést nyert, hogy a Cu²⁺-4A katalizátoron hasonlóan, koncertikus mechanizmussal játszódik le a reakció, mint azt korábban Pd²⁺ katalizátorra már javasolták. Jó lett volna azt is kimutatni, hogy a nitrilek és az amidok ekvivalens mennyiségben képződnek vagy nem. Ha nem akkor ez azt jelezhetette volna, hogy szerepe lehet a vízmegkötő katalizátornak és létezik egy másik, nitrilképződésre vezető reakcióút is.

Tézisek

A 24 reakció típus vizsgálatának eredményeire Jelölt 17 tézist alapoz.

Jelölt a dolgozat bevezetésében a következőket fogalmazza meg munkája céljának: „Alapvetően a sikeres reakciók optimálását, gyakorlati célra is alkalmas reakciókörülmények kidolgozását tartottuk fontosnak, a katalizátorok szerkezetének vizsgálatával kevesebbet foglalkoztunk.”

Az 1-7., 10., 11., 13-15. és 17. tézisekben Jelölt kinyilvánítja, hogy a kitűzött célt az egyes reakcióknál milyen katalizátorral és milyen körülmények között tudta leginkább elérni. A téziseket alkalmazott (ipari) kutatás új eredményként ismerem el. Az eredmények alkalmasak lehetnek ismert hatóanyagok és intermedierek környezetbarát gyártási eljárásának megalapozásához. Ugyanakkor a tézisek ok-okozati összefüggéseket, valamennyire is általánosítható tudományos felismeréseket nem fogalmaznak meg.

A 3. tézisnek azt a részét, mely új oxa-Pictet-Spengler mechanizmust valószínűsít, új tudományos eredménynek fogadom el, mivel Jelöltnek sikerült a reakció intermedierjét kísérletileg kimutatni.

A 8. tézis a hidrotalcit katalizátor diasztereoselektivitásáról szól malonsav-allil-észterek intramolekuláris gyűrűzárási reakciójában. A dolgozatban a diasztereoselektivitást a réteges szerkezetű hidrotalcit alakszelektív katalitikus hatásának tulajdonította. Szerintem jó lett volna a tézisben is ezt hangsúlyozni. A tézist új tudományos eredménynek fogadom el.

A 9. tézisben Jelölt azt fogalmazza meg, hogy kapott eredménye, az izoxazol származékok képződése, nincs összhangban azzal a várakozásával, hogy ciklopropánszármazékok fognak képződni. Kísérleti eredmény az izoxazol képződésre javasolt mechanizmust nem támasztja alá. Az eredmények alkalmasak egy sokkal jobb tézis megalapozására is. A tézist jelen formájában nem fogadom el.

A 12. tézis szobahőmérsékletű reakcióra vonatkozó része alkalmazott kutatás értékes eredménye, nevezetesen heterogén katalitikus eljárás nitroalkoholok előállítására.

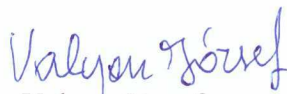
A dinitropropánok keletkezésére javasolt új mechanizmust nem tartom kísérletileg kellően alátámasztottnak.

A hidrotalcit sztereoselektív katalitikus hatásának felismerését új tudományos eredménynek fogadom el.

A 16. tézis aldoximok, köztük a szalicilaldoximok nitrillé alakításának új eljárásra vonatkozik réz-zeolit katalizátoron. Az ismert reakció mechanizmus „spektroszkópiái” igazolásával a dolgozatban nem találkoztam, kísérleti igazolását nem találtam meggyőzőnek. A tézis új eljárásra vonatkozó részét elfogadom. A fordított irányú reakcióra vonatkozó részt, mely szerint ugyanilyen katalizátoron egy nitril acetaldoximmal amiddá alakítható szintén új felismerésnek fogadom el.

Szeretném, ha dolgozatot a Doktori Tanács nyilvános vitára bocsátaná és a bírálatok, a válaszok, valamint a dolgozat ismeretében Jelölt tudományos teljesítményét a tudósó bíráló bizottság értékelné.

Budapest, 2018. március 1.


Valyon József

a kémiai tudomány doktora