

Doktori (Ph.D.) értekezés tézisei

**Nanorészecskékkel módosított PVDF membránok
alkalmazása olajemulziók hatékony kezelésére**

Fazekas Ákos Ferenc

Témavezetők:

Prof. Dr. László Zsuzsanna

egyetemi tanár

Dr. habil. Veréb Gábor, PhD

egyetemi docens



Környezettudományi Doktori Iskola
Szegedi Tudományegyetem

Szeged

2025

1. Bevezetés és célkitűzések

A globális vízgazdálkodás korunk egyik legsürgetőbb és legsokoldalúbb kihívása, amely környezeti, társadalmi és gazdasági szempontból egyaránt kiemelkedő jelentőséggel bír. A világszerte növekvő népesség, valamint az ezzel párhuzamosan bővülő és technológiailag egyre fejlettebb ipari és mezőgazdasági tevékenységek következtében jelentősen fokozódik a víz iránti kereslet, amellyel egyrészt a vízkészletek mennyiségi terhelése is nő, másrészt azok minőségi állapota is egyre nagyobb veszélynek van kitéve. A szennyvizekben megjelenő új típusú szennyeződések – mint például a mikroszennyezők, peszticidek, gyógyszermaradványok, vagy olajeredetű komponensek – eltávolítása a hagyományos szennyvíztisztítási eljárásokkal gyakran nem, vagy csak korlátozott hatékonysággal valósítható meg. Ebből kifolyólag elengedhetetlenné válik olyan korszerű, célzott vízkezelési technológiák fejlesztése és alkalmazása, amelyek a hagyományos eljárások kiegészítéseként vagy azok alternatívájaként is alkalmasak az ilyen változatos szennyeződések hatékony kezelésére.

A modern vízkezelési technológiák különös jelentőséggel bírnak az olajjal szennyezett vizek tisztításában, tekintve, hogy számos iparág igen nagy mennyiségben termel olaj tartalmú szennyvizet, amelyek gyakran toxikus vagy akár rákkeltő vegyületeket is tartalmaznak, így jelentős kockázatot jelentenek a környezetre, az élővilágra és az emberi egészségre egyaránt. Bár az ún. „felúszó” és a nagyobb méretű diszpergált olajszennyeződések (olajcseppátmérő: $>5\ \mu\text{m}$) eltávolítása hagyományos módszerekkel – például flotálással, homokfogókkal vagy olajleválasztókkal – is megoldható, az ennél kisebb, finoman diszpergált, emulgeált (olajcseppátmérő: $<5\ \mu\text{m}$) vagy oldott olajszennyezések hatékony eltávolítása már fejlettebb, célzott technológiák alkalmazását teszi szükségessé. A mikro- és nanoméretű olajcseppek eltávolítására alkalmas módszert kínálhat a membránszűrés, melynek számos előnye van, mint például a kiemelkedő tisztítási hatékonyság, a kis vegyszerigény, illetve az, hogy viszonylag könnyen

integrálható más technikákhoz. Ugyanakkor a gazdaságos alkalmazhatósága komoly kihívást jelent, tekintve, hogy az olajos szennyeződések a membránok gyors eltömődését okozzák („fouling”), ami csökkenti a membránok vízáteresztő képességét (fluxusát), így az élettartamát, illetve növeli az energiafogyasztást.

Doktori kutatásom fő célkitűzése ezért egyrészt olyan titán-dioxid (TiO_2) alapú nanokompozitokkal módosított, az eltömődésre kevésbé hajlamos membránfelületek kialakítása (fizikai immobilizálással), melyek a kisebb mérettartományba eső olajcseppek eltávolítására is hatékony megoldást nyújtanak, valamint annak a vizsgálata, hogy a különböző nanokompozitokkal módosított membránok eltérő felületi tulajdonságai (hidrofilitás, felületi töltés, felületi érdesség) hogyan befolyásolják a főbb membránszűrési paramétereket, beleértve a fluxusértéket, a fluxuscsökkenési- és a fluxusvisszanyerési arányokat, a különböző szűrési ellenállásokat és a tisztítási hatékonyságot.

Főbb célkitűzéseim közé tartozott különböző szén nanocső (CNT) tartalmú (1, 2, 5 m/m%) TiO_2 /CNT nanokompozittal módosított polivinilidén-fluorid (PVDF) membránok kialakítása és összehasonlítása az elérhető vízfluxusok, valamint az olajemulziók szűrése során elérhető fluxusok vonatkozásában, illetve a felületmódosítások hatásának vizsgálata a szűrés során kialakuló ellenállástípusokra, mely a membráneltömődés jellegéről szolgáltathat információt. Céлом volt továbbá részletesen megvizsgálni és összehasonlítani különböző transzmembrán nyomásokon végzett szűrések során elért szűrési paramétereket és tisztítási hatékonyságokat a módosítatlan és a felületkezelt membránok tekintetében. Ezen kívül különböző poláros, oxigéntartalmú funkciós csoportokat is tartalmazó, funkcionális szén nanocsövek alkalmazásával TiO_2 /fCNT kompozitokkal módosított PVDF membránokat is kialakítottam, és elemeztem a funkcionálisításokból adódó hidrofilitás és felületi töltés változásának a szűrési paraméterekre gyakorolt hatásait. Doktori munkám során célul tűztam ki olyan membránfelületek kialakítását is, amelyek nemcsak a szűrési

paraméterek javítására irányulnak olajemulziók tisztítása során, hanem egyúttal lehetővé teszik az olajszennyezők hatékony lebontását is. Ennek vizsgálatára ezüsttartalmú titán-dioxiddal módosított membránfelületeket alakítottam ki és vizsgáltam egyrészt az ezüst, mint fotodegradációs hatékonyságot növelő komponens szerepét (metilnarancs oldat, illetve olajemulzió bontása esetén), másrészt a membránfelületre, és ezáltal a szűrési paraméterekre gyakorolt hatását egyaránt.

2. Alkalmazott anyagok és módszerek

2.1 Membránfelületek nanorészecskékkel történő módosítása, és az alkalmazott TiO_2/CNT és $\text{TiO}_2\text{-Ag}$ nanokompozitok előállítása

A membránfelületek módosításához minden esetben kereskedelmi forgalomban kapható ultraszűrő (250 kDa) vagy mikroszűrő (0,2 μm) PVDF lapmembránokat alkalmaztam (*New Logic Research Inc., Minden, Louisiana, USA*). A membránok felületének TiO_2 -dal (*Aeroxid P25, Evonik Industries, Németország*), TiO_2/CNT és funkcionizált szén nanocsövet tartalmazó TiO_2/fCNT nanokompozittal, illetve $\text{TiO}_2\text{-Ag}$ nanorészecskékkel történő módosítása fizikai immobilizálással került kialakításra. A nanorészecskékből 400 mg/l koncentrációjú homogén szuszpenziókat készítettem, majd 0,3 MPa transzmembrán nyomást alkalmazva a membrán felületére szűrtem. A funkcionizált szén nanocsövek közül kettő kereskedelmi forgalomban kapható ($-\text{COOH}$ és $-\text{OH}$ csoportokkal funkcionizált szén nanocső; *Nanografi Nanotechnology, Ankara, Törökország*), további kettő felületének a funkcionizálását (*Alfa Aesar, Waltham, USA*) pedig saját magam végeztem 15 M-os salétromsav oldatban és 10 M-os kénsav és salétromsav oldatok 3:1 térfogatarányú keverékében történő reagáltatásukkal. Az ezüsttel módosított TiO_2 részecskék szintézise során a TiO_2 nanorészecskék felületére AgNO_3 redukciójával történt az ezüst leválasztása.

2.2 A funkcionizált szén nanocsövek és az ezüsttel módosított titán-dioxid jellemzése

A szén nanocsövek oxidálása során a felületükön kialakult funkciós csoportok kémiai tulajdonságainak a meghatározására egy JASCO 4100 típusú Fourier-transzformációs infravörös spektroszkópot (*Jasco, Tokió, Japán*) használtunk. Az ezüsttel módosított TiO₂ részecskék ezüst tartalmát egy HITACHI S-4700 Type II pásztázó elektronmikroszkóppal (*Hitachi High-Tech Corporation, Japán*) határoztunk meg, egy Röntec QX2 EDS detektor használatával (*Röntec GmbH, Németország*). A fotokatalizátorok optikai tulajdonságait diffúz reflexiós spektroszkópiával (DRS) határoztuk meg a 200 és 800 nm közötti tartományban, egy CHEM 2000 UV–VIS spektrofotométerrel (*Ocean Optics Inc., Orlando, FL, USA*). A nanorészecskék fotolumineszcenciáját (PL) egy Horiba Jobin Yvon Fluoromax-4 spektrofluorométerrel (*Horiba Ltd., Kyoto, Japán*) mértük, 350 nm gerjesztési hullámhosszon.

2.3 Olajemulzió készítése és jellemzése

Az olajemulziókat a MOL Nyrt. (*Algyő, Magyarország*) által biztosított nyers kőolajokból állítottam elő. Először egy 1 m/m%-os kőolaj-ultratiszta víz diszperziót állítottam elő nagy fordulatszámú (35000 rpm) keveréssel (*Einhell TC-MG 135 E, Németország*), majd a diszperzió hígításával és ultrahangos homogenizálásával (*Hielscher UP200S, Teltow, Németország*) olajemulziót készítettem úgy, hogy annak olajtartalomra számított koncentrációja (TOG/TPH) minden esetben 100 mg/l volt. Az olajcseppek átmérője az 50-1500 nm-es tartományba esett (*Malvern ZetaSizer NanoZS, Egyesült Királyság*).

2.4 Membránfelületek jellemzése

A membránfelületek hidrofilitását egy Dataphysics Oca 15EC (*DataPhysics Instruments GmbH, Németország*) készülékkel jellemeztem. A kontaktszög

értékek meghatározásához a Dataphysics Contact Angle System OCA15Pro szoftvert használtam. A membránfelületek zéta-potenciál értékének a jellemzését egy Anton Paar SurPASS 3 (*AntonPaar Gmbh, Graz, Ausztria*) készülékkel végeztük el. A membránfelületek érdességének meghatározására egy PSIA XE-100 típusú atomerő-mikroszkópot (AFM – Atomic Force Microscope) használtunk. A membránfelületek morfológiájának vizsgálata egy Hitachi S-4700 Type II típusú hidegkatódos téremissziós pásztázó elektronmikroszkóppal (SEM - scanning electron microscopy) történt.

2.5 Kőolajminták gázkromatográfiás elválasztással kombinált tömegspektrometriai vizsgálata (GC-MS)

Az olajemulziók előállítására használt nyers kőolajminták összetételeinek a meghatározását egy Agilent 7890 B gázkromatográfhoz (*Agilent Technologies, Inc., USA*) csatlakoztatott Agilent 5975C VL-MSD tömegspektrométer segítségével végeztük.

2.6 Fotokatalitikus aktivitások jellemzése

A TiO₂-Ag nanokompozittal módosított membránok fotokatalitikus aktivitását metilnarancs oldat ($c = 10^{-5}$ M) és olaj-víz emulzió ($c = 50$ mg/L) fotokatalitikus oxidációjával is vizsgáltam. A kísérleteket egy duplafalú üveg fotoreaktorban végeztem folyamatos keverés mellett. A fényforrás egy UV-A kompakt fluoreszcens fénycső volt ($P = 10$ W, $\lambda_{max} = 360$ nm, *LightTech Kft., Dunakeszi, Magyarország*).

2.7 Membránszűrési kísérletek

A szűrési kísérleteket (illetve a membránok nanorészecskékkel történő módosítását is) egy henger alakú, laboratóriumi méretű ($V = 250$ ml), Millipore XFUF07601 típusú membránszűrő reaktorban végeztem ötös térfogatsűrítési

arányig (volume reduction ration: $VRR = 5$), vagyis 200 ml szűrlet és 50 ml koncentrátum keletkezéséig. A szűrések során 1-3 bar (0,1-0,3 MPa) transzmembrán nyomásokat alkalmaztam. A szűréseket szobahőmérsékleten végeztem. A szűrőberendezésből távozó szűrletet (permeátumot) egy analitikai mérlegen (*KERN EG-N, KERN & SOHN GmbH, Németország*) elhelyezett nyitott üvegedény gyűjtötte. A mérleg egy számítógéphez csatlakozott, amely 5 másodpercenként automatikusan rögzítette a permeátum tömegének a változását, amelyekből meghatározásra kerültek a szűréseket jellemző fluxusértékek, majd a különböző szűrési ellenállások (a membrán saját ellenállása, valamint a reverzibilis, az irreverzibilis és a teljes szűrési ellenállások), illetve a fluxuscsökkenési (FDR) és a fluxusvisszanyerési (FRR) arányok.

2.8 A membránszűrések tisztításai hatékonyságának jellemzése

A membránszűrések hatékonyságának jellemzésére nefelometriás zavarosságot (*Hach 2100N, Hach Company, USA*), kémiai oxigénigényt (KOI; Lovibond ET 108 típusú roncsoló, illetve Lovibond PCcheckit COD vario fotométer, *Lovibond/Tintometer Limited, Egyesült Királyság*) valamint egyes esetekben extrahálható olajtartalmat (*WILKS InfraCal TOG/TPH, WILKS Enterprise, Inc., USA*) is mértem. A tisztítási hatékonyságokat a kiindulási olajemulziók és a szűrletek adott paramétereinek (zavarosság, KOI, TOG/TPH) az arányából számoltam.

3. Új tudományos eredmények, tézispontok

T1) Megállapítottam, hogy (100 mg/l extrahálható olajtartalmú) olajemulziók membránszűrése során, az 1 mg/cm² felületi borítottságú TiO₂/CNT kompozittal felületmódosított (250 kDa vágási értékű) PVDF membránok esetében a 2 m/m% szén nanocső tartalom eredményezi a legkedvezőbb tulajdonságokat a szűrési paraméterek, így az elérhető fluxusok, a kialakuló szűrési ellenállások és a tisztítási hatékonyságok vonatkozásában egyaránt.

- A 2 m/m% szén nanocső tartalmú TiO₂/CNT kompozittal módosított PVDF membrán 0,1 MPa transzmembrán nyomás alkalmazása mellett, 100 mg/l koncentrációjú olajemulzió szűrése során, közel négyszeres fluxusnövekedést eredményezett a módosítatlan PVDF membránhoz képest (510 l/(m²h), illetve 130 l/(m²h)), míg az 1 és 5 m/m% szén nanocső tartalmú kompozitok alkalmazása esetében 310 és 170 l/(m²h) fluxusértékeket mértem. A teljes ellenállás értéke 75%-kal, az irreverzibilis ellenállásé 60%-kal, valamint a reverzibilis ellenállásé több, mint 90%-kal csökkent a TiO₂/CNT_{2%} nanokompozittal történő felületmódosítás hatására, melyek a legnagyobb mértékű csökkenések a vizsgált (0, 1, 2 és 5 m/m%) szén nanocső tartalmak vonatkozásában.
- Az olajszennyeződéseknek a TiO₂/CNT kompozitmembránokon való megtapadását a membránfelületek hidrofilitásából, valamint a negatív felületi töltésből adódó taszító erők együttes hatása határozza meg. Míg kisebb CNT tartalom esetén (1 ill. 2 m/m%) jelentősen nagyobb fluxusokat (310 és 510 l/(m²h)) mértem a módosítatlan és a titán-dioxiddal felületmódosított membránok által biztosított (130 és 185 l/(m²h)) fluxusoknál, addig az 5 m/m% CNT tartalmú TiO₂/CNT nanokompozittal módosított membrán esetében már viszonylag kisebb (170 l/(m²h)) fluxust mértem, ugyanis az 5 m/m% szén nanocső tartalmú TiO₂/CNT_{5%}

kompozitmembrán kisebb hidrofilitása – melynek értéke a kompozitmembránok közül a legalacsonyabb volt – ellensúlyozta a negatív töltésű CNT-k jelenlétéből származó kedvező elektrosztatikus kölcsönhatásokat.

- A 2 m/m% szén nanocső tartalmú TiO_2/CNT nanokompozittal felületmódosított PVDF membránnal magasabb szennyezőanyag-eltávolítás érhető el a zavarosság, a kémiai oxigénigény, valamint az extrahálható olajtartalom tekintetében egyaránt (99,8; 96,0; 98,1%) a módosítatlan membránhoz képest (98,5; 95,4; 97,7%).

T2) Megállapítottam, hogy a 2 m/m% szén nanocső tartalmú TiO_2/CNT kompozitnak a 250 kDa vágási értékű PVDF membrán szűrési paramétereire gyakorolt pozitív hatása a transzmembrán nyomás emelésével egyre jelentősebbé válik 100 mg/l extrahálható olajtartalmú olajemulziók szűrése során.

- A módosítatlan PVDF membrán esetében az ötszörös térfogatsűrítési arány elérésekor ($\text{VRR} = 5$), 0,1, 0,2 és 0,3 MPa transzmembrán nyomás esetén 130, 155 és 190 l/(m²h) fluxusokat, míg 2 m/m% szén nanocső tartalmú TiO_2/CNT kompozittal módosított membrán esetén 510, 900 és 1340 l/(m²h) fluxusértékeket mértem, vagyis közel 4-szer, 6-szor, illetve 7-szer magasabb fluxusok érhetőek el a felületmódosítás hatására 0,1, 0,2 és 0,3 MPa transzmembrán nyomások esetén.
- A módosítatlan membránok irreverzibilis szűrési ellenállása a transzmembrán nyomás 0,1-ről 0,3 MPa-ra történő emelésével közel hétszeresére emelkedett, ami rendkívül alacsony fluxus-visszanyerési arányokat (FRR) is eredményezett: 20%-os és 9%-os értékeket 0,1 és 0,3 MPa nyomásokon. Ezzel szemben a $\text{TiO}_2/\text{CNT}_{2\%}$ kompozittal módosított

membránok esetében, az irreverzibilis ellenállás csak kétszeresére nőtt a 0,3 MPa transzmembrán nyomás hatására, ami 68 és 47%-os fluxusvisszanyerési arányokat jelent 0,1 és 0,3 MPa transzmembrán nyomások esetén.

- Míg a módosítatlan PVDF membrán esetében a nagyobb (0,3 MPa) transzmembrán nyomás alkalmazásával a tisztítási hatékonyság jelentősen lecsökkent, 82,5, 79,8, illetve 88,5%-ra (a zavarosság, a KOI és az extrahálható olajtartalom tekintetében), addig a $\text{TiO}_2/\text{CNT}_{2\%}$ kompozittal módosított membrán a nagyobb (0,3 MPa) transzmembrán nyomás alkalmazásakor is kiváló tisztítási hatékonyságot eredményezett (98,9, 95,1 és 96,8%, ismét a zavarosság, a KOI és az extrahálható olajtartalom értékekre vonatkozóan).

T3) Igazoltam, hogy a funkcionális szén nanocsövek alkalmazása a PVDF(MF) membránok felületmódosítására használt TiO_2/CNT kompozitokban kedvező hatású a (100 mg/l extrahálható olajtartalmú) olajemulziók szűrése során, ami a membránfelület megnövekedett hidrofilitásának és/vagy a negatívabb felületi töltésének köszönhető, illetve, hogy az olajszennyezések felületen való megtapadásának, és a fluxus-visszanyerhetőségének a szempontjából kiemeltebb jelentősége van a negatív felületi töltésnek, mint a szuperhidrofilitásnak (különösen magasabb olajkoncentráció, illetve térfogatsűrítési arány esetén).

- A poláris funkciós csoportokkal felületmódosított (CNT_a sorozat: kereskedelmi forgalomban kapható nem funkcionális, $-\text{COOH}$ és $-\text{OH}$ funkcionális; CNT_b sorozat: saját előállítású nem funkcionális, HNO_3 vagy $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3$ -al funkcionális) szén nanocsövet tartalmazó TiO_2/CNT nanokompozittal módosított PVDF(MF) membránok

alkalmazásával az olajemulziók szűrésének kezdeti szakaszában ($VRR = 1,5$) 1,6–3,8-szor magasabb fluxusértékeket mértem (TiO_2/CNT_a sorozat esetén: 194 és 455 l/(m²h); TiO_2/CNT_b sorozat esetén: 774 és 678 l/(m²h)), mint a funkciós csoportokat nem tartalmazó TiO_2/CNT nanokompozittal módosított PVDF(MF) membránok esetében (TiO_2/CNT_a : 117 l/(m²h); TiO_2/CNT_b : 333 l/(m²h)).

- Elmondható, hogy számottevően magasabb fluxus-visszanyerési arány (58–72%) érhető el azokkal a TiO_2/CNT_a nanokompozit membránokkal, amelyek bár jelentős hidrofilitást mutatnak (5–20° közötti kontaktszög-értékekkel rendelkeznek), viszont ehhez nagy felületi töltés, magas zéta-potenciál (-20 -40 mV) társul. Ezzel szemben a TiO_2/CNT_b sorozat membránjai esetén az FRR-értékek csupán 42–44%-osak voltak annak ellenére, hogy ezen membránok még a TiO_2/CNT_a sorozat membránjainál is hidrofilebbek (a kontaktszög mindhárom membrán esetében 0°), azonban a zéta-potenciál értékük alacsony (mindössze -4 – -5 mV).

T4) Megállapítottam, hogy a vízszenyező olaj összetétele – különös tekintettel a poláros/amfipatikus szénhidrogének jelenlétére vagy hiányára – jelentősen befolyásolja a PVDF membránok felületén kialakuló iszapleplenyt, és végső soron a fluxuscsökkenés mértékét is abból adódóan, hogy a szénhidrogén összetevők – szakirodalmi adatok alapján – alapvetően meghatározzák az emulziók stabilitását és/vagy koaleszcenciára való hajlamát.

- Megállapítottam, hogy az olajemulzióban található poláros, amfipatikus funkciós csoportokat tartalmazó komponensek természetes felületaktív anyagként viselkedve stabilizálják az olajcseppeket és magasabb térfogatsűrítési arányok mellett is alacsonyabb reverzibilis szűrés

ellenállást és fluxuscsökkenési arányt eredményeznek (R-reverzibilis_{TiO₂/CNT2%} = $9,4 \times 10^{10} \text{ m}^{-1}$, FDR_{TiO₂/CNT2%} = 41%). Ugyanakkor a poláris/amfipatikus tulajdonságú szénhidrogénekben szegény olajemulzió stabilitása kisebb, így jelentősebb koaleszencia léphet fel az olajcseppek között, ezáltal – főleg magasabb térfogatsűrítési arányoknál – jelentősebb iszaplepleny alakulhat ki a membrán felületén, amely magasabb reverzibilis ellenállást és fluxuscsökkenési arányt eredményez a poláros komponenseket tartalmazó olajemulziókhoz képest (R-reverzibilis_{TiO₂/CNT2%} = $3,3 \times 10^{12} \text{ m}^{-1}$, FDR_{TiO₂/CNT2%} = 97%).

T5) Megállapítottam, hogy a fizikai immobilizálással készített, 0,2 m/m% ezüstöt is tartalmazó (1 mg/cm² felületi borítottságú) TiO₂-Ag nanokompozittal felületmódosított, 0,2 μm pórusátmérőjű PVDF mikroszűrő membránfelületnek számottevően (~1,9 illetve ~1,5-ször) nagyobb a fotokatalitikus aktivitása, nemcsak (c = 10⁻⁵ M) metilnarancs modelloldat, de nyers ásványi olajból készült (50 mg/l extrahálható olajtartalmú) olajemulzió fotokatalitikus degradációja esetén is, mint a csak TiO₂-dal felületmódosított membránfelületnek.

- Kísérleti eredményeim alapján az 50 mg/l koncentrációjú olajemulzió kémiai oxigénigénye 30%-kal volt csökkenthető egy 10 W teljesítményű, 360 nm-es intenzitásmaximummal rendelkező UV-lámpával történő 8 órás besugárzás során, két 36 cm² felületű, 1 mg/cm² TiO₂-Ag nanokompozittal felületmódosított PVDF membrán alkalmazásával, ami 1,5-szeres hatékonyságot jelent a csak TiO₂-ot tartalmazó membránfelületek alkalmazása esetén mért 20%-os KOI csökkenéshez képest. Hasonló kísérleti paraméterek mellett, 300 perces besugárzást követően az ezüsttartalmú titándioxiddal módosított membránok 87%-os fotodegradációs koncentráció csökkenést mutattak a metilnarancs oldat (c

= 10^{-5} M) lebontásában, míg a kizárólag titándioxiddal felületmódosított membránok esetében ez az érték mindössze 46% volt (ami 1,9-szeres növekedést jelent az ezüsttel történő módosítás hatására).

T6) Megállapítottam, hogy a 0,2 m/m% ezüstöt is tartalmazó, TiO_2 -Ag nanokompozitok egységesebb és homogénebb morfológiájú nanorészecske bevonatot képeznek a (0,2 μm pórusátmérőjű) PVDF membrán felületén az ezüstmentes TiO_2 nanorészecskékhez képest, ami kedvezően befolyásolja a membránnal elérhető szűrési paramétereket a (100 mg/l extrahálható olajtartalmú) olajemulziók membránszeparációja során.

- A hidrofil TiO_2 -Ag nanorészecskék jelentősen negatív felületi töltése (-37,6 mV) csökkenthette a nanorészecskék aggregációját a membránok felületmódosításához felhasznált szuszpenziókban, melynek révén kevésbé érdes, illetve homogénebb felületek alakultak ki, illetve a negatív felületi töltés fokozta az elektrosztatikus taszító erőket a membrán és az ugyancsak negatív töltésű olajcseppek között is, csökkentve az olajcseppek megtapadását a membránfelületen. Ennek eredményeként a fluxus több, mint háromszorosára nőtt a referencia (nanorészecske-mentes) membránhoz és több, mint másfélszeresére a TiO_2 bevonatú membránhoz képest. A fluxus visszanyerési arányok, vagyis az FRR értékek is jelentősen javultak: a referencia membrán 45%-os értékéhez képest a TiO_2 bevonatú membrán esetében 71%, míg a TiO_2 -Ag bevonatú membrán esetében 92% volt, ami az irreverzibilis ellenállás csökkenését és a membrán hatékonyabb vízzel történő lemoshatóságát jelzi.

4. Tudományos tevékenységek (MTMT-azonosító: 10062260)

4.1 Az értekezés alapját képező tudományos publikációk

- Fekete, L.; Fazekas, Á.F.; Hodúr, C.; László, Z.; Ágoston, Á.; Janovák, L.; Gyulavári, T.; Pap, Z.; Hernadi, K.; Veréb, G.: *Outstanding Separation Performance of Oil-in-Water Emulsions with TiO₂/CNT Nanocomposite-Modified PVDF Membranes*. Membranes **2023**, 13, 209.

<https://doi.org/10.3390/membranes13020209>

Q2; IF = 4,2; WOS-idézettség = 13

<https://www.webofscience.com/wos/woscc/full-record/WOS:000941497200001>

- Á. F. Fazekas, T. Gyulavári, Zs. Pap, A. Bodor, K. Laczi, K. Perei, E. Illés, Zs. László, G. Veréb: *Effects of Different TiO₂/CNT Coatings of PVDF Membranes on the Filtration of Oil-Contaminated Wastewaters*, Membranes **2023**, 13, 812.

<https://doi.org/10.3390/membranes13100812>

Q2; IF = 4,2; WOS-idézettség = 3

<https://www.webofscience.com/wos/woscc/full-record/WOS:001099410600001>

- **Fazekas, Á.F.**; Gyulavári, T.; Ágoston, Á.; Janovák, L.; Kopniczky, J.; László, Z.; Veréb, G.: *Enhanced Photocatalytic and Filtration Performance of TiO₂-Ag Composite-Coated Membrane Used for the Separation of Oil Emulsions*. Separations **2024**, 11, 112.

<https://doi.org/10.3390/separations11040112>

Q3; IF = 2,6

<https://www.webofscience.com/wos/woscc/full-record/WOS:001211176300001>

Az értekezés alapját képező publikációk összesített hatástényezője: $\sum$ IF = 11,0

Ezen publikációk összesített hivatkozás száma: $\sum$ WoS-idézettség = 16

4.2 Egyéb, az értekezés témájához szorosan nem kapcsolódó tudományos publikációk

- E. Nascimben Santos, **Á. F. Fazekas**, L. Fekete, T. Miklós, T. Gyulavári, S. A. Gokulakrishnan, G. Arthanareeswaran, C. Hodúr, Zs. László, G. Veréb: *Enhancing membrane performance for oily wastewater treatment: comparison of PVDF composite membranes prepared by coating, blending, and grafting methods using TiO₂, BiVO₄, CNT, and PVP*. Environmental Science and Pollution Research 2024, 31

Q1; IF=5,8

- K. Sebők-Nagy, Z. Kóta, A. Kincses, **Á. F. Fazekas**, A. Dér, Zs. László, T. Páli: *Spin Label Electron Paramagnetic Resonance Spectroscopy Reveals Effects of Wastewater Filter Membrane Coated with Titanium-Dioxide Nanoparticles on Bovine Serum Albumin*. Molecules, 2023, 28, 6750.

Q1; IF=4,6

- A. N. Al-Tayawi, N. Sz. Gulyás, G. Gergely, **Á. F. Fazekas**, B. Szegedi, C. Hodúr, J. R. Lennert, Sz. Kertész: *Enhancing ultrafiltration performance for dairy wastewater treatment using a 3D printed turbulence promoter*. Environmental Science and Pollution Research 2023, 30.

Q1; IF=5,8

- E. J. Sisay, **Á. Fazekas**, T. Gyulavári, J. Kopniczky, B. Hopp, G. Veréb, Zs. László: *Investigation of Photocatalytic PVDF Membranes Containing Inorganic Nanoparticles for Model Dairy Wastewater Treatment*. Membranes, 2023, 14, 656.

Q2; IF=4,2

- E. Zs. Kedves, C. Fodor, **Á. F. Fazekas**, I. Székely, Á. Szamosvölgyi, A. Sági, Z. Kónya, L. C. Pop, L. Baia, Zs. Pap: *α -MoO₃ with inhibitive properties in Fenton reactions and insights on its general impact on OH radical based advanced oxidation processes*. Applied Surface Science, 2023, 624, 1569.

Q1; IF=6,7

- J. E. Sisay, Sz. Kertész, **Á. F. Fazekas**, Jákói Z., Zs. Kedves, G. Veréb, Zs. László: *Application of BiVO₄/TiO₂/CNT composite photocatalysts for membrane fouling control and photocatalytic membrane regeneration during dairy wastewater treatment*. Catalyst, 2023, 13, 315.

Q2; IF=3,9

- E. N. Santos, **Á. F. Fazekas**, C. Hodúr, Zs. László, S. Beszédes, D. S. Firak, T. Gyulavári, K. Hernádi, G. Arthanareeswaran, G. Veréb: *Statistical Analysis of Synthesis Parameters to Fabricate PVDF/PVP/TiO₂ Membranes via Phase-Inversion with Enhanced Filtration Performance and Photocatalytic Properties*. Polymers 2022, 14, 113.

Q1; IF=5,0

- C, Hodúr, V. Nagypál, **Á. Fazekas**, E. Mikó: *Blue and grey water footprint of some Hungarian milking parlors*. Water Practice and Technology, 2022, 17,7.

Q3; IF=1,6

- Zs. László, **Á. Fazekas**, C. Hodúr, G. Arthanareeswaran, G. Veréb: *Cost estimation of combined membrane separation and different advanced oxidation processes pre-treatment of oily wastewater*. Geosciences and Engineering: A publication of the University of Miskolc, 2021, 8, 12
- J. Elias, K. Bagi, **Á. Fazekas**, Sz. Kertész, G. Veréb, Zs. László: *Filtration of BSA through TiO₂ photocatalyst modified PVDF membranes*. Desalination and Water Treatment, 2020

Q3; IF=1,4

- G. Rózsa, **Á. Fazekas**, M. Náfrádi, T. Alapi, K. Schrantz, E. Takács, L. Wojnárovics, A. Fath, T. Oppenlander: *Transformation of atrazine by photolysis and radiolysis: kinetic parameters, intermediates and economic consideration*. Environmental Science and Pollution Research, 2019

Q2; IF=3,0

- G. Veréb, V.E. Gayir, E. Nascimben Santos, **Á. Fazekas**, Sz. Kertész, C. Hodúr, Zs. László: *Purification of real car wash wastewater with complex coagulation/flocculation methods using polyaluminum chloride, polyelectrolyte, clay mineral and cationic surfactant*. Water Science and Technology, 2018, 80, 10

Q2; IF=1,9

Egyéb, az értekezés témájához szorosan nem kapcsolódó tudományos publikációk összesített hatástényezője: $\sum IF = 43,9$

4.3 Konferencia-részvételek (8 db)

- **Fazekas Ákos Ferenc**, Veréb Gábor, László Zsuzsanna: *TiO₂ és TiO₂/CNT nanokompozittal módosított membránok alkalmazása olajszennyezett vizek tisztítására*, XV. Környezetvédelmi Analitikai és Technológiai Konferencia, Balatonszárszó (2024) – szóbeli előadás
- **Fazekas Ákos Ferenc**, Beszédes Sándor, Kertész Szabolcs, Hodúr Cecília, László Zsuzsanna, Veréb Gábor: *Surface modification of polyvinylidene-difluorid (PVDF) microfiltration membranes by polydopamine grafting for more effective filtration of oil emulsions*, 30th International Symposium on Analytical and Environmental Problems, Szeged (2024) – poszter prezentáció
- **Fazekas Ákos Ferenc**, Veréb Gábor, László Zsuzsanna: *Immobilization of TiO₂ and TiO₂/CNT nanoparticles using polydopamine to fabricate photocatalytically active PVDF membranes for filtration of oil emulsions*, International Conference on Science, Technology, Engineering and Economy (2024) – poszter prezentáció
- **Fazekas Ákos Ferenc**, Hochner Kata, Jákói Zoltán, Kertész Szabolcs, Beszédes Sándor, Hodúr Cecília, Gyulavári Tamás, Pap Zsolt, Hernád Klára, László Zsuzsanna, Veréb Gábor: *Effects of the composition and pH of oil emulsions on their membrane separation with photocatalytic TiO₂/PVDF composite membranes*, The 28th International Conference on Advanced Oxidation Technologies for Treatment of Water, Air and Soil, Limassol, Ciprus (2024) – legjobb poszter prezentáció
- **Fazekas Ákos Ferenc**, Miklós Tímea, László Zsuzsanna, Veréb Gábor: *Fabrication of TiO₂ and TiO₂/CNT modified PVDF membranes by in situ polymerization and characterization of their photocatalytic activity and*

filtering properties, 29th International Symposium on Analytical and Environmental Problems, Szeged (2023) – poszter prezentáció

- **Fazekas Ákos Ferenc**, Mag Dávid, Kertész Szabolcs, Beszédes Sándor, Jákói Zoltán, Kovács Gábor, Pap Zsolt, Hodúr Cecília, László Zsuzsanna, Veréb Gábor: *Separation of oil in water emulsion with TiO_2 and different $TiO_2/(f)CNT$ composite modified microfilter membranes*, International Conference on Science, Technology, Engineering and Economy, Szeged (2022) – szóbeli előadás
- **Fazekas Ákos Ferenc**, Ágoston Áron, Janovák László, Kertész Szabolcs, Beszédes Sándor, Hodúr Cecília, László Zsuzsanna, Pap Zsolt, Veréb Gábor: *Ag és Cu adalékolt TiO_2 bevonatú membránok szűrési és fotokatalitikus tulajdonságai olajtartalmú szennyvizek tisztítása során*, XXVIII. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Nagyvárad, Románia (2022) – poszter prezentáció
- **Fazekas Ákos Ferenc**, Elias Jigar Sisay, Erika Nascimben Santos, Beszédes Sándor, Kertész Szabolcs, Veréb Gábor, Hodúr Cecília, László Zsuzsanna: *Nanorészecskékkel módosított membránok a szennyvízkezelésben*, Dulovics Junior Szimpózium, online (2021) – szóbeli előadás

Társszerzői lemondó nyilatkozat

Alulírott Fekete Laura hozzájárulok, hogy Fazekas Ákos Ferenc felhasználja az Outstanding Separation Performance of Oil-in-Water Emulsions with TiO₂/CNT Nanocomposite-Modified PVDF Membranes, Fekete, L.; Fazekas, Á.F.; Hodúr, C.; László, Z.; Ágoston, Á.; Janovák, L.; Gyulavári, T.; Pap, Z.; Hernadi, K.; Veréb, G., Membranes, 2023) közleményünkben foglalt eredményeinket a Szegedi Tudományegyetem Környezettudományi Doktori Iskola keretében a PhD fokozat megszerzéséért benyújtott dolgozatában, és egyúttal kijelentem, hogy ezeket az eredményeket nem használtam fel tudományos fokozat megszerzésekor, s ezt a jövőben sem teszem.

Kijelentem, hogy a szóban forgó közleményben a jelölt szerepe meghatározó fontosságú.

2025. 07. 30.


aláírás