

# **Klórozott szénhidrogének hidrodeklórozása Pt- és Pd-tartalmú zeolitokon**

Ph.D. értekezés tézisei

**Imre Béla**

Alkalmazott és Környezeti Kémiai Tanszék  
Szegedi Tudományegyetem

Szeged  
2005

**Témavezetők:**

**Dr. Halász János**  
**Dr. Hannus István**  
**Dr. Kiricsi Imre**

## 1. Bevezetés

Az ember miközben igyekszik civilizációs igényeit kielégíteni, egészségét megóvni és életkörülményein javítani, az őt körülvevő világot átalakítja, saját rövidtávú igényei szerint formálja. Mára azonban a rövidtávú gazdaságpolitika érezteti a környezetet érintő nem kívánt mellékhatásait.

A kémiai ipar kb. 70000-féle molekulát, anyagot gyárt viszonylag nagy mennyiségben, s a gyártás folyamán kb. 700000-féle melléktermék képződik. Ezek környezeti és egészségügyi hatásait csak részben ismerjük, a teljes feltérképezés szinte lehetetlen. Számos, nagy mennyiségben előállított és felhasználásra került vegyszerről bizonyosodott be, hogy felhalmozódva a környezetben, közvetve vagy közvetlenül veszélyezteti az embert, kifejtve toxikus, karcinogén és mutagén hatását. Ilyenek a halogéntartalmú szerves vegyületek is, melyek között kiemelt helyet foglalnak el a klórozott szénhidrogének. Ezeket a vegyületeket kedvező kémiai és fizikai tulajdonságaik miatt nagy mennyiségben alkalmazták és alkalmazzák az iparban, a mezőgazdaságban és az egészségügyben.

A melléktermékként képződött, valamint az alkalmazás után feleslegessé vált klórtartalmú szénhidrogéneket, melyek általában más szerves vegyületekkel együtt fordulnak elő, a környezet védelme érdekében nem lehetne hulladéklerakóban elhelyezni, vagy a légkörbe juttatni. Így más úton kell ezeket megsemmisíteni, ártalmatlanítani, vagy célszerűen újrahasznosítani.

A klórozott szénhidrogének lebontása oxidatív vagy redukzív úton mehet végbe. Az első folyamat eredményeképpen kedvező esetben szén-dioxid, víz és halogéntartalmú szerves anyagok képződnek, melyek ugyan a környezetet nem terhelik, de a szerves anyag átalakul. A redukzív folyamat eredményeként újrahasznosítható termékek jöhetnek létre, igaz a folyamatban az olcsó levegő helyett a viszonylag drága hidrogént kell használni. A gazdaságosságot az előállított termékek tisztasága és értéke határozza meg. Így olyan katalizátor kifejlesztése lehet a cél, melyen nagy szelektivitással csak egy adott, gazdaságilag hasznosítható termék képződik.

## 2. Célkitűzés

Munkánk céljaul a klórozott szénhidrogének reduktív lebontásának, a hidrodeklórozási reakciók következő problémáinak megválaszolásához való hozzájárulást tűztük ki.

Nemesfém tartalmú zeolitkatalizátorok előállítás és jellemzése különböző fizikai-kémiai módszerekkel. Ezekből a vizsgálatokból következtethetünk (i) a zeolit szerkezetében bekövetkező változásokra, (ii) a reakciókra előkészített katalizátorokban a nemesfémionokból, legtöbb esetben a platinaionból, redukció során képződött fém nanorészecskék méretére, és (iii) a redukációs folyamat során a zeolitban kialakuló savas csoportok mennyiségére.

A katalizátorok különböző előkezelésének általában jelentős befolyása van az aktív centrumok természetére, azok kémiai környezetére. Az általunk használt, különbözőképpen előkezelt zeolitok jellemzésekor kapott eredmények megmutathatják, hogy különbözik-e a katalizátorok (i) savassága, (ii) a katalizátorokban kialakuló fém nanorészecskék elhelyezkedése, valamint (iii) a fémrészecskék mérete az előkezelés megváltozásával.

A reakció során kialakuló felületi termékek természetére és a reakció lefutásának mikéntjére a reakció infravörös spektroszkópiás követéséből kapott eredményekből tudunk következtetni. A kiindulási anyagok, a felületi átmeneti termékek és a reakciók végtermékeinek ismeretében javaslatot lehet tenni az átalakulás egy lehetséges mechanizmusára, az átalakulás lefolyására.

A reaktorkísérletekből adódó célok úgy összegezhetők, hogy a kísérletek eredménye kvantitatív adatokat szolgáltat a reakcióban reagáló és keletkező anyagok mennyiségi viszonyainak megértéséhez. Ez pedig nélkülözhetetlen a reakciómechanizmus felderítésében.

### 3. Kísérleti módszerek

Kísérleteink során különböző típusú és eltérő összetételű zeolitot alkalmaztunk, illetve állítottunk elő: NaY-FAU, NaM-MOR, NaZSM-5-MFI, illetve ezeknek hidrogén-, kobalt-, platina- és palládiumionokkal ioncserélt, valamint ezek sóival impregnált formáit.

A zeolitminták előkezelése „oxidatív” valamint „oxidatív-reduktív” eljárásokkal történt. Az előállított és előkezelt katalizátorokat a rendelkezésünkre álló műszeres analitikai módszerekkel jellemeztük.

A katalizátor felületén kialakuló adszorbeálódott molekulák és a reakciók során keletkezett termékek és köztitermékek detektálására *in situ* FT-IR méréseket végeztünk. Ehhez olyan evakuálható küvettarendszer volt szükséges, amely magasabb hőmérsékleten és alacsony nyomáson tette lehetővé a katalizátorok tanulmányozását.

A Pt- és Pd-tartalmat emissziós atomspektroszkópiai méréssel (ICP), míg a Co-tartalmat komplexometriás titrálással, illetve UV-VIS spektroszkópiás módszerrel határoztuk meg. A KBr-os technika esetén 2 mg az egyes kísérletekben használt zeolitmintát mértünk be 200 mg KBr-ba, majd 1 cm átmérőjű pasztillákat készítettünk és felvettük ezek FT-IR spektrumát. Ezzel a módszerrel elsősorban a zeolit vázában a reakció során bekövetkező változásokat lehet vizsgálni.

A savassági vizsgálatok során 10 Torr piridint adszorbeáltattunk az előkezelt mintákra, ezután 100, 200, 300 és 400 °C-ra lassan felfűtöttük. 1 órás adszorpció után további 1 óráig evakuáltuk a mintát és lehűtöttük szobahőmérsékletre, majd felvettük a spektrumát. A spektrumokat LiTaO<sub>3</sub> detektorral felszerelt, 1 cm<sup>-1</sup> felbontású, Mattson Genesis 1 FT-IR spektrofotométerrel vettük fel.

A Pd és Pt részecskék méretét transzmissziós elektronmikroszkópia (TEM) segítségével határoztuk meg. A felvételekhez 100 kV feszültség mellett üzemelő CM 10 típusú készüléket alkalmaztunk.

Röntgendiffrakciós mérések (XRD) segítségével a zeolitrácsban bekövetkező változásokat tudtuk tanulmányozni. Vizsgálataink során DRON-2 típusú diffraktométert használtunk, az elporított mintákról  $2\theta = 4^\circ - 40^\circ$  szögtartományban vettünk fel diffraktogramokat.

A mágneses magrezonancia mérések BRUKER MSL 400 típusú készülék segítségével történtek. A <sup>23</sup>Na-, <sup>27</sup>Al-, <sup>29</sup>Si-MAS-NMR (Magic Angle Spinning NMR-spektroszkópia)

mérések értékes információt szolgáltatnak a zeolitrácsnak az adszorpció és a felületi reakciók során bekövetkező változásairól. A  $^{13}\text{C}$ - és  $^{19}\text{F}$ -NMR technika pedig a felületi reakciók kvantitatív és kvalitatív összefüggéseiről ad felvilágosítást. A zeolitmintákat egy speciális NMR csőbe helyeztük és  $450\text{ }^\circ\text{C}$ -on 2 órán keresztül evakuáltuk, majd az aktivált mintákhoz lehűlés után hozzáadtuk a reaktánsokat  $0,01\text{ g}_{\text{CFC}}/0,05\text{ g}_{\text{zeolit}}$  arányban. Ezután az NMR csövet leforrasztottuk. A spektrumokat különböző hőmérsékleten regisztráltuk.

A reaktoros kísérleteket állóágas reaktorban hajtottuk végre, a termékeket gázkromatográfiásan elemeztük.

#### 4. Új tudományos eredmények

1. Ioncserével és impregnálással készített Pt- és Pd-tartalmú zeolitok előkezelésére és redukálására különböző módszereket alkalmaztunk, és piridin adszorpcióval meghatároztuk a Brønsted és Lewis savcentrumok mennyiségét és minőségét. Megállapítottuk, hogy az oxigénes előkezelést követő hidrogénes redukció adja az optimális eredményt. Az ioncserével készült minták erős Brønsted savas centrumokat tartalmaznak, míg az impregnáltak nem. Mindkét minta csak kis koncentrációban tartalmaz erős Lewis savas centrumokat.
2. Transzmissziós elektronmikroszkópiával és röntgendiffrakcióval meghatároztuk az ioncserével és impregnálással készített mintákban a redukció után létrejött nemesfém (Pt, Pd) klaszterek méretét. Megállapítottuk, hogy az impregnált mintákban a zeolit kristályok külső felületén, átlagosan  $\sim 20\text{ nm}$  átmérőjű, míg az ioncserélt mintákban egyenletes eloszlással, az Y-FAU zeolit nagyüregeiben  $2\text{ nm}$ -nél kisebb fém szemcsék keletkeznek. Utóbbi esetben a zeolit kristályossága csökken.
3. Szilárdfázisú  $^{19}\text{F}$  NMR technikával bizonyítottuk azt a korábbi mechanizmus feltételezést, hogy a freonok ( $\text{CCl}_2\text{F}_2$ ,  $\text{CHClF}_2$ ) és a zeolitok kölcsönhatása során a freonok fluor tartalma a zeolit alumíniumjával reagál  $\text{AlF}_3$ -ot képezve a zeolitban. Ez a reakció eredményezi a freonok esetében a zeolitok dealuminálódását, miközben a zeolitváz részben vagy teljesen összeomlik. A dealuminálódás és ezzel párhuzamosan a rácsösszeomlás mértéke a Si/Al arány növekedtével a különböző típusú zeolitoknál a  $\text{FAU} > \text{MOR} > \text{ZSM-5}$  sorrendben csökken.
4. Megállapítottuk, hogy az általunk alkalmazott reakció körülmények között, hidrogén atmoszférában a Pt,NaY-FAU és a  $\text{CHClF}_2$  közötti kölcsönhatásban nem a hidrodeklórozás, hanem a zeolitváz oxigénjével történő reakció volt a domináns, melynek

végterméke szén-monoxid. A fém Pt-án adszorbeált CO-ot infravörös spektroszkópián azonosítottuk.

5. A szén-tetraklorid és a Pt,NaY-FAU zeolit kölcsönhatása során, hidrogén távollétében a korábbi irodalmi adatokkal összhangban foszgén keletkezését tapasztaltuk, ami azt jelzi, hogy nem katalitikus, hanem a reaktáns és a zeolit közötti reakció játszódik le. Hidrogén atmoszférában a hidrodeklórozási reakció főtermékeit ( $\text{CH}_4$ ,  $\text{HCl}$ ) detektáltuk. Alacsonyabb hőmérsékleteken (100, 200 °C) jelentős mennyiségben detektáltunk kloroformot, melynek köztitermék jellegét az mutatja, hogy a hőmérséklet emelésével mennyisége maximum görbe szerint változik. A hidrogén atmoszféra ellenére alacsonyabb hőmérsékleteken, a jelentős mennyiségű Brønsted savas centrummal rendelkező ioncserélt Pt,NaY-FAU mintán foszgén is keletkezett. Mivel ugyanezt a Brønsted centrumokat nem tartalmazó, impregnált mintán nem tudtuk kimutatni, ez azt jelenti, hogy a hidrodeklórozási reakció aktív centruma a nemesfém klaszter, míg a zeolittal történő reakcióé a Brønsted savas centrum.
6. Kétszénatomos klórvegyületek, triklór-etilén és tetraklór-etán Pt-tartalmú zeolitokon történő hidrodeklórozása során döntően etán és  $\text{HCl}$  keletkezését detektáltuk. Reaktoros kísérleteink tanúsága szerint Co beépítése a Pt mellé csökkentette az etán szelektivitást, míg csak Co-tartalmú zeoliton jelentőssé vált a részleges hidrodeklórozás, ami etil-klorid, diklór-etán és legnagyobb mennyiségben triklór-etán keletkezését eredményezte.
7. A Pd,NaY-FAU zeoliton a  $\text{CCl}_4$  hidrodeklórozása során szintén kimutattuk kis mennyiségben a melléktermék foszgén jelenlétét, viszont a Pt-zeolitos mérések eredményével ellentétben kloroform keletkezését nem és a főtermék nem metán, hanem etán volt és a reakció magasabb hőmérsékleten játszódott le.
8. Kísérleteink alapján megállapítottuk, hogy a Pt,NaY-FAU és a Pd,NaY-FAU minták aktivitása és szelektivitása különböző. Mivel a Pt nemesebb fém a Pd-nál, a szén-tetraklorid és a köztitermékek adszorpciója erősebb a Pd szemcséken, így a hidrogén beépülésének valószínűsége nagyobb Pd-on, mint Pt-án. Ez magyarázza, hogy Pd-on nem keletkezik kloroform és a főtermék metán helyett etán.

## **5. Az eredmények hasznosítása**

A dolgozatban bemutatott eredmények annak ellenére, hogy alapkutatás jellegűek, hasznosíthatók a környezetvédelemben. Ismeretes ugyanis, hogy a halogéntartalmú vegyületek nagy veszélyt jelentenek, nemcsak a földi élővilágra, hanem a Föld ózonpajzsára egyaránt. Munkánk során ezeknek a veszélyes szénhidrogéneknek a legegyszerűbb képviselőit vizsgáltuk. Arra voltunk kíváncsiak, hogy hidrogénnel heterogén katalitikus körülmények között reagáltatva őket, előállíthatók-e értékesebb termékek, mint pl. szénhidrogének, ezekből az anyagokból. Mivel azt tapasztaltuk, hogy ez alkalmas körülmények között lehetséges, a technológiát alkalmasnak tartjuk bizonyos esetekben és körülmények között ipari megvalósításra is.



## Az értekezés tárgykörében megjelent közlemények

1. **Imre, B.**, Kónya, Z., Halász, J., Hannus, I.:  
C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub> halogénszármazékok hidrodehalogénezése Pd/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> katalizátor jelenlétében  
*Proc. of the 8<sup>th</sup> Symp. on Analytical and Environmental Problems*, 226-321 o. (2001).
2. Hannus, I., **Imre, B.**, Kónya, Z., B.Nagy, J., Kiricsi, I.:  
Transformation of chlorofluorocarbons on zeolites: dealumination  
*React. Kinet. Catal. Lett.*, **74**, 309 (2001) IF: 0,400
3. **Imre, B.**, Kónya, Z., Hannus, I., Halász, J., B.Nagy, J., Kiricsi, I.:  
Hydrodechlorination of chlorinated compounds on different zeolites  
*Stud. Surf. Sci. Catal.*, **142**, 927 (2002) IF: 3,469
4. Hannus I., **Imre B.**, Kiricsi I.,:  
Klórozott szénhidrogének hidrodeklórozása zeolitokon  
*VIII. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Erdélyi Magyar Műszaki Tudományos Társaság  
Kiadványa*, Kolozsvár, 2002. 108-113. oldal.
5. **Imre, B.**, Hannus, I., Kónya, Z., Kiricsi, I.:  
IR spectroscopic reinvestigation of the generation of acid sites in Pt-containing  
faujasite zeolites  
*J. Mol. Struct.*, **651-653**, 191 (2003). IF: 1,021
6. Halász, J., **Imre, B.**, Hannus, I.:  
IR spectroscopic investigation of hydrodechlorination on Pt-containing zeolites  
*Appl. Catal. A, General* **271** 47 (2004). IF: 2,378
7. **Imre B.**, Hannus I., Kónya Z., B.Nagy, J., Kiricsi I.,:  
Hydrodechlorination of carbon tetrachloride on Pt-containing zeolites.  
*Stud. Surf. Sci. Catal.*, **154** (2004) 2536. IF: 0,467
8. **Imre, B.**, Hannus, I., Kiricsi, I.:  
Comparative IR spectroscopic study of Pt- and Pd-containing zeolites in the  
hydrodechlorination reaction of carbon tetrachloride  
*J. Mol. Struct.*, **744-747**, 501 (2005) IF: 1,200

Össz. impaktfaktor: 8,935

## Az értekezés anyagából tartott előadások és poszterek

1. **Imre B.**, Kónya Z., Hannus I., Halász J., Kiricsi I.,:  
Hydrodechlorination of chlorinated compounds on different zeolites.  
*10<sup>th</sup> Roermond Conference on Catalysis*, Hydrogen in Catalysis: Fuels, Chemicals, Pharmaceuticals, Kerkrade, The Netherlands, June 30-july 5, 2002. Rolduc Abbey (poszter)
2. **Imre B.**, Kónya Z., Hannus I., Halász J., B.Nagy J., Kiricsi I.,:  
Hydrodechlorination of chlorinated compounds on different zeolites.  
*2<sup>nd</sup> FEZA Conference*, Taormina, Italy, September 1-5, 2002, P 31 (poszter).
3. **Imre B.**, Kónya Z., Hannus I., Kiricsi I.,:  
IR spectroscopic reinvestigation of the generation of acid sites in Pt-containing faujasite zeolites.  
*XXVI. EUCMOS*, Lille, France, September 1-6, 2002, (előadás)
4. **Imre B.**, Kónya Z., Hannus I., Halász J., B.Nagy, J., Kiricsi I.,:  
Catalytic activity of different zeolites in hydrodechlorination reaction  
*6<sup>th</sup> Pannonian International Symposium on Catalysis*, Obergurgl, Ötztal, Tirol, Austria, Sept. 11 - 14, 2002, P14 (poszter)
5. Hannus I., **Imre B.**, Kiricsi I.,:  
Klórozott szénhidrogének hidrodeklórozása zeolitokon  
*VIII. Nemzetközi Vegyészkonferencia*, Kolozsvár, 2002. nov. 15-17. (előadás)
6. **Imre B.**,:  
Pt-tartalmú faujazit zeolitok savassági vizsgálata IR spektroszkópia alkalmazásával  
*46. Magyar Spektrokémiai Vándorgyűlés*, Szeged, 2003. jún. 30-júl. 2. (előadás)
7. **Imre B.**, Hannus I., Kónya Z., Kiricsi I.,:  
Hydrodechlorination of carbon tetrachloride on Pt-containing zeolites.  
*EuropaCat-VI*, August 31-September 04, 2003 Innsbruck, Austria (poszter)
8. **Imre B.**, Hannus I., Kónya Z., B.Nagy, J., Kiricsi I.,:  
Hydrodechlorination of carbon tetrachloride on Pt-containing zeolites.  
*14<sup>th</sup> International Zeolite Conference*, Cape Town, South Africa, 25-30 April, 2004 (poszter)
9. **Imre B.**, Hannus I., Kiricsi I.,:  
Comparative IR spectroscopic study of Pt- and Pd-containing zeolites in the hydrodechlorination reaction of carbon tetrachloride  
*XXVII. EUCMOS*, Krakow, Poland, September 5-10, 2004, (poszter)

### Társszerzői lemondó nyilatkozat

C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub> halogénszármazékok hidrodehalogénezése Pd/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> katalizátor jelenlétében

**Imre, B.**, Kónya, Z., Halász, J., Hannus, I.

*Proc. of the 8<sup>th</sup> Symp. on Analytical and Environmental Problems*, 226-321 o. (2001).

Alulírott nyilatkozom, hogy a jelölt, publikációhoz kapcsolódó tézisét(eit) (7., 8.) ismerem, a tézisekben foglalt tudományos eredményeket tudományos fokozat megszerzéséhez nem használtam fel, s tudomásul veszem, hogy azokat ilyen célból a jövőben sem használhatom fel.

Dr. Halász János

Dr. Hannus István

Dr. Kiricsi Imre

Dr. Kónya Zoltán

### Társszerzői lemondó nyilatkozat

Transformation of chlorofluorocarbons on zeolites: dealumination

Hannus, I., **Imre, B.**, Kónya, Z., B.Nagy, J., Kiricsi, I.

*React. Kinet. Catal. Lett.*, **74**, 309 (2001)

Alulírott nyilatkozom, hogy a jelölt, publikációhoz kapcsolódó tézisét(eit) (3.) ismerem, a tézisekben foglalt tudományos eredményeket tudományos fokozat megszerzéséhez nem használtam fel, s tudomásul veszem, hogy azokat ilyen célból a jövőben sem használhatom fel.

Dr. Halász János

Dr. Hannus István

Dr. Kiricsi Imre

Dr. Kónya Zoltán

### Társszerzői lemondó nyilatkozat

Hydrodechlorination of chlorinated compounds on different zeolites

**Imre, B.**, Kónya, Z., Hannus, I., Halász, J., B.Nagy, J., Kiricsi, I.

*Stud. Surf. Sci. Catal.*, **142**, 927 (2002)

Alulírott nyilatkozom, hogy a jelölt, publikációhoz kapcsolódó tézisét(eit) (1., 2.) ismerem, a tézisekben foglalt tudományos eredményeket tudományos fokozat megszerzéséhez nem használtam fel, s tudomásul veszem, hogy azokat ilyen célból a jövőben sem használhatom fel.

Dr. Halász János

Dr. Hannus István

Dr. Kiricsi Imre

Dr. Kónya Zoltán

## Társszerzői lemondó nyilatkozat

Klórozott szénhidrogének hidrodeklórozása zeolitokon

Hannus I., **Imre B.**, Kiricsi I.

*VIII. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Erdélyi Magyar Műszaki Tudományos Társaság  
Kiadványa, Kolozsvár, 2002. 108-113. oldal.*

Alulírott nyilatkozom, hogy a jelölt, publikációhoz kapcsolódó tézisét(eit) (4.) ismerem, a tézisekben foglalt tudományos eredményeket tudományos fokozat megszerzéséhez nem használtam fel, s tudomásul veszem, hogy azokat ilyen célból a jövőben sem használhatom fel.

Dr. Halász János

Dr. Hannus István

Dr. Kiricsi Imre

Dr. Kónya Zoltán

### Társszerzői lemondó nyilatkozat

IR spectroscopic reinvestigation of the generation of acid sites in Pt containing faujasite zeolites

**Imre, B.**, Hannus, I., Kónya, Z., Kiricsi, I.  
*J. Mol. Struct.*, **651-653**, 191 (2003)

Alulírott nyilatkozom, hogy a jelölt, publikációhoz kapcsolódó tézisét(eit) (1., 6.) ismerem, a tézisekben foglalt tudományos eredményeket tudományos fokozat megszerzéséhez nem használtam fel, s tudomásul veszem, hogy azokat ilyen célból a jövőben sem használhatom fel.

Dr. Halász János

Dr. Hannus István

Dr. Kiricsi Imre

Dr. Kónya Zoltán

## Társszerzői lemondó nyilatkozat

IR spectroscopic investigation of hydrodechlorination on Pt-containing zeolites

Halász, J., **Imre, B.**, Hannus, I.

*Appl. Catal. A, General* **271** 47 (2004)

Alulírott nyilatkozom, hogy a jelölt, publikációhoz kapcsolódó tézisét(eit) (5., 8.) ismerem, a tézisekben foglalt tudományos eredményeket tudományos fokozat megszerzéséhez nem használtam fel, s tudomásul veszem, hogy azokat ilyen célból a jövőben sem használhatom fel.

Dr. Halász János

Dr. Hannus István

Dr. Kiricsi Imre

Dr. Kónya Zoltán



## Társszerzői lemondó nyilatkozat

Hydrodechlorination of carbon tetrachloride on Pt-containing zeolites

**Imre B.**, Hannus I., Kónya Z., B.Nagy, J., Kiricsi I.

*Stud. Surf. Sci. Catal.*, **154** (2004) 2536.

Alulírott nyilatkozom, hogy a jelölt, publikációhoz kapcsolódó tézisét(eit) (5.) ismerem, a tézisekben foglalt tudományos eredményeket tudományos fokozat megszerzéséhez nem használtam fel, s tudomásul veszem, hogy azokat ilyen célból a jövőben sem használhatom fel.

Dr. Halász János

Dr. Hannus István

Dr. Kiricsi Imre

Dr. Kónya Zoltán

### Társszerzői lemondó nyilatkozat

Comparative IR spectroscopic study of Pt- and Pd-containing zeolites in the hydrodechlorination reaction of carbon tetrachloride

**Imre, B.,** Hannus, I., Kiricsi, I.

*J. Mol. Struct.*, **744-747**, 501 (2005)

Alulírott nyilatkozom, hogy a jelölt, publikációhoz kapcsolódó tézisét(eit) (8.) ismerem, a tézisekben foglalt tudományos eredményeket tudományos fokozat megszerzéséhez nem használtam fel, s tudomásul veszem, hogy azokat ilyen célból a jövőben sem használhatom fel.

Dr. Halász János

Dr. Hannus István

Dr. Kiricsi Imre

Dr. Kónya Zoltán

Szeged, 2005.05.30.