BUDAPESTI MŰSZAKI ÉS GAZDASÁGTUDOMÁNYI EGYETEM
VEGYÉSZMÉRNÖKI ÉS BIOMÉRNÖKI KAR
OLÁH GYÖRGY DOKTORI ISKOLA

Cellulóz alapú hidrogélek előállítása és jellemzése

Tézisfüzet

Szerző: Fekete Tamás
Témavezető: Dr. Borsa Judit
Konzulens: Dr. Takács Erzsébet

Fizikai Kémia és Anyagtudományi Tanszék

Magyar Tudományos Akadémia Energiatudományi Kutatóközpont
Energia- és Környezetbiztonsági Intézet
Sugárkémiai Laboratórium

2017

1. Bevezetés és irodalmi háttér

A hidrogélek olyan rendszerek, amelyeket a vázat képező polimer térháló és a térhálót kitöltő víz alkot. Ezek alcsoportját képezik a szuperabszorbensek, amelyek száraz tömegük legalább több tízszeresének vagy akár több százszorosának megfelelő mennyiségű víz felvételére képesek. Különösen nagy érdeklődés övezi egészségügyi felhasználásukat, de más területeken való alkalmazásukkal is egyre több kutatás foglalkozik. A kereskedelmi forgalomban elérhető szuperabszorbensek közül a különböző szintetikus polimer, főként akrilát alapú rendszerek a legjelentősebbek.[1] Egyre fontosabbá válik azonban a különböző megújuló forrásból származó alapanyagok kutatása, mivel nemcsak környezetbarát alternatívát kínálnak a szintetikus polimer alapú gélekkel szemben, hanem számos előnyös tulajdonsággal is rendelkeznek.

A ***cellulóz*** a legnagyobb mennyiségben megtalálható megújuló nyersanyag. Előnyös tulajdonságai és viszonylag kis előállítási költségei miatt ipari alkalmazása jelentős és egyre nő. Sok kutatás foglalkozott felhasználásával hidrogélek előállítására, azonban nagy hátrányt jelent vízoldhatatlansága, ami miatt különleges oldószerekre van szükség. Ezért kerültek előtérbe különböző származékai, mivel a cellulóz – viszonylag könnyen és olcsón megvalósítható – kémiai módosításával a polimer vízoldhatóvá tehető.

A ***cellulózszármazék alapú rendszerek*** esetén fizikai és kémiai gélek egyaránt előállíthatók.[2] A kémiai gélek előállításának egyik útját a térhálósító – legalább bifunkciós – vegyületek adagolása, másikat a szabadgyökös térhálósítás képezi. A szabad gyökök kémiai iniciátorokkal (pl. perszulfátokkal) és nagyenergiájú sugárzással (jellemzően gamma- és elektronsugárzással) hozhatók létre. A nagyenergiájú sugárzás napjainkban egyre inkább előtérbe kerül, mivel ekkor a térhálósodás adalékok nélkül is lejátszódik. A gélképzéshez a cellulózszármazékok vizes oldatát használják, ezért a sugárzás hatására nemcsak közvetlenül a láncon jönnek létre gyökök a kémiai kötések felszakadásával, hanem a víz radiolízisének köztitermékei is hozzájárulnak a makrogyökök létrehozásához. A képződő gyökök ezt követően további reakciókban vesznek részt, amelyek keresztkötések kialakulásához (rekombináció útján) és láncdegradációhoz vezethetnek. Az ilyen rendszerek gélesedési hajlamát viszonylag későn fedezték fel, mivel a térhálósodási folyamatok csak megfelelően tömény oldatban kerülnek előtérbe.[3] A kutatások kiemelten foglalkoztak a karboximetil-cellulóz rendszerekkel, illetve más, iparilag jelentős alkil, hidroxialkil és alkil-hidroxialkil

[1] Ahmed, E. M., *J. Adv. Res.* 6:105-121 (2015)
[2] Chang, C., Zhang, L., *Carbohyd. Polym.* 84:40-53 (2011)
[3] Fei, B., Wach, R. A., Mitomo, H., Yoshii, F., Kume, T., *J. Appl. Polym. Sci.* 78:278-283 (2000)

származékok gélesedését is vizsgálták, azonban az egyes származékok viselkedését nem vetették össze behatóan. Nem áll rendelkezésre továbbá irodalom a cellulózszármazék rendszerek szabadgyökös térhálósításáról ***térhálósító vegyületek*** jelenlétében sem, annak ellenére, hogy alkalmazásuk a szintetikus polimereknél széles körben elterjedt a gélesedés javítására.

A kutatások nemcsak a tiszta cellulózszármazék gélekre, hanem azok különböző ***kopolimer és kompozit géljeikre*** is irányulnak. Ilyen kombinált rendszerek kialakításával a géltulajdonságok az alkalmazási követelményeknek megfelelően módosíthatók. Ennek egyik irányát a szervetlen adalékokkal képzett kompozitok, míg a másikat a más polimerekkel alkotott kopolimer rendszerek alkotják. Különösen a különböző szintetikus polimerekkel képzett kopolimerek rendelkeznek nagy irodalommal, mivel kezdetben a cellulózszármazékokat a már alaposan ismert rendszerek módosítására alkalmazták. Kiemelten fontosak közülük nagy gyakorlati jelentőségük miatt az ***akrilátok***. Mivel az akrilátok polimerizációja és térhálósodása szabadgyökösen zajlik, ezért a cellulózszármazék/akrilát kopolimer hidrogélek előállítására a sugárzásos eljárás alkalmazása kézenfekvő. Bár ilyen rendszerekkel több kutatás is foglalkozott, a tanulmányozott gélek jellemzően kis (< 20%) mennyiségben tartalmazták a poliszacharidot, így tulajdonságaikat elsősorban az akrilát komponens határozta meg.[4] Kis mennyiségű akrilsavat tartalmazó, cellulózszármazék alapú rendszerek gélesedését nem kutatták, pedig feltehetően az akrilsav – nagy reaktivitásának köszönhetően – jelentősen javítaná a cellulózszármazékok térhálósodását, miközben az utóbbi előnyös tulajdonságai nem változnának jelentősen.

A cellulózszármazékok más megújuló forrásból származó polimerekkel, jellemzően ***más poliszacharidokkal***, például algináttal és kitozánnal alkotott keverékei azért váltották ki a kutatók érdeklődését, mert a hasonló kémiai szerkezet következtében a közös térháló egyszerűen kialakítható. Bár a ***keményítő*** a cellulózhoz hasonlóan a természetben az egyik legnagyobb mennyiségben jelenlévő, nagyon olcsón kinyerhető polimer, a hidrogélek előállítására csak különböző szintetikus polimerekkel képzett kopolimerjeit használták. A cellulózszármazék/keményítő keverékek kutatása elsősorban különböző filmek és membránok előállítására korlátozódik, géleket egyedül a keményítő karboximetil származékának felhasználásával állítottak elő. A különböző poliszacharidok adagolása útján a géljellemzők egyszerűen változtathatók úgy, hogy a gél továbbra is teljesen poliszacharid alapú, ezért az ilyen rendszerek nagy potenciált mutatnak olyan alkalmazásoknál, ahol például fontos

[4] Said, H. M., Abd Alla, S. G., El-Naggar, A. W. M., *React. Funct. Polym.* 61:397-404 (2004)

követelmény a jó biodegradálhatóság.

A hidrogélek számos területen felhasználhatók. A cellulózszármazék alapú rendszerek esetében – a szintetikus polimer alapú rendszerekhez hasonlóan – a legjelentősebb terület az egészségügyi alkalmazás, ahol elsősorban a hatóanyagleadásban, a sebfedésben és a szövettenyésztésben övezi őket nagy érdeklődés – az ilyen termékek már a kereskedelemben is megjelentek. Két másik, napjainkban egyre inkább előtérbe kerülő potenciális alkalmazási ág a szennyvízkezelés és a ***mezőgazdaság***; utóbbinál a gélek mint ***talajjavító rendszerek*** hasznosíthatók. A növénytermesztés szempontjából kulcsfontosságú a talaj vízmegkötő képessége, ugyanis a növény számára megfelelő mennyiségű víznek kell rendelkezésre állnia a számára hozzáférhető talajrétegben. Szuperabszorbensek adagolásával a talaj vízmegkötő képessége jelentősen javítható, ezáltal már rossz minőségű, homokos talajok is alkalmassá válhatnak a mezőgazdasági felhasználásra. Másik lehetséges alkalmazás a hatóanyagleadás, mivel a gélbe keveréssel a ***tápanyagok, illetve növényvédő szerek szabályozott leadása*** miatt azok egyenletesebben, sokkal hosszabb ideig fejtik ki a hatásukat. Bár az eddigi kutatások nagyon kedvező eredményeket hoztak mindkét területen, a vizsgálatokat nagyrészt akrilát alapú szuperabszorbensekkel végezték. [5] Ezek nagy hátránya, hogy nagyon lassan degradálódnak a talajban, így akár évtizedekbe is telhet a teljes lebomlásuk.[6] Ez jelentősen korlátozza az alkalmazhatóságukat, ezért is nőtt az elmúlt években az igény a természetes polimer alapú, könnyen biodegradálódó szuperabszorbens talajjavítók felhasználására.[7]

Munkám célja olyan cellulózszármazék alapú szuperabszorbensek előállítása volt nagyenergiájú sugárzással, amelyek akár a kereskedelmi forgalomban levő, szintetikus polimer alapú termékek kiváltására is alkalmasak lehetnek. Első lépésként a legjelentősebb cellulózszármazékok gélesedéséről szerettem volna a rendelkezésre álló irodalomnál átfogóbb képet nyerni, összevetve az egyes származékok viselkedését, illetve megfigyelve az előállítási paraméterek hatásában jelentkező eltéréseket. Az optimális tulajdonságokhoz szükséges előállítási paraméterek meghatározása mellett törekedtem a géltulajdonságok további javítására térhálósító adagolásával, illetve kopolimerek előállítása útján. A fő célkitűzés a lehető legjobb jellemzők elérése volt olyan módon, hogy a nem megújuló komponensek a lehető legkisebb mennyiségben kerüljenek felhasználásra. A gyakorlati alkalmazhatóság igazolásához emellett kulcsfontosságú volt az előállított szuperabszorbensek összevetése a

[5] Zohuriaan-Mehr, M. J., Omidian, H., Doroudiani, S., Kabiri, K., *J. Mater. Sci.* 45:5711-5735 (2010)
[6] Wilske, B., Bai, M., Lindenstruth, B., Bach, M., Rezaie, Z., Frede, H. G., Breuer, L., *Environ. Sci. Pollut. R.* 21:9453-2014 (2014)
[7] Guilherme, M. R., Aouada, F. A., Fajardo, A. R., Martins, A. F., Paulino, A. T., Davi, M. F. T., Rubira, A. F., Muniz, E. C., *Eur. Polym. J.* 72:365-385 (2015)

kereskedelmi termékekkel, illetve viselkedésük vizsgálata felhasználási körülmények közt egy választott alkalmazási területen (mezőgazdaság).

2. Kísérleti módszerek

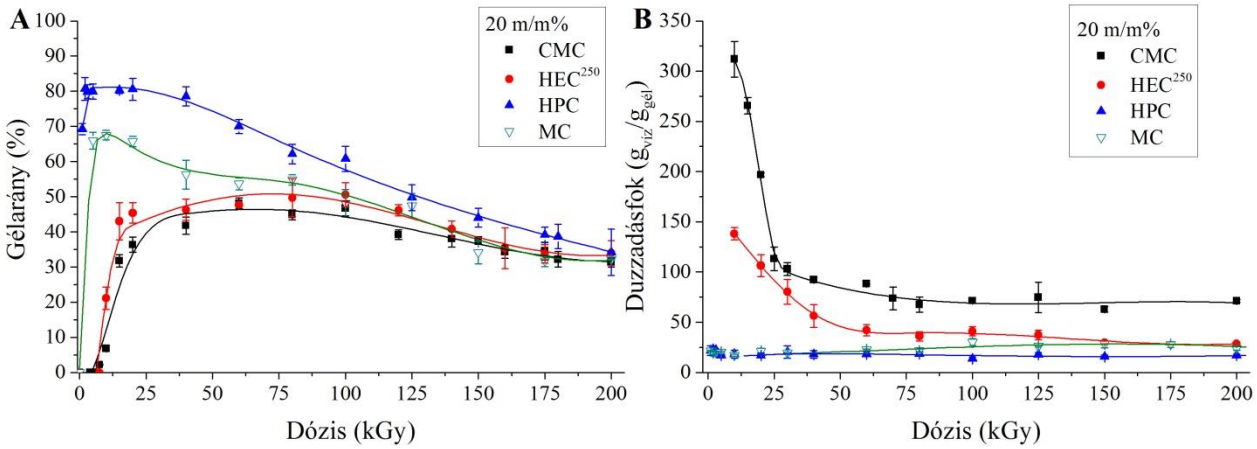
Négy cellulózszármazék (karboximetil- (CMC), hidroxietil- (HEC), hidroxipropil- (HPC) és metil-cellulóz (MC)) vizes oldatainak felhasználásával állítottam elő szuperabszorbens géleket, gamma-sugárzással (Co^{60} sugárforrás, 9 kGy/h dózisteljesítmény) iniciálva a szabadgyökös térhálósítást. Meghatároztam a cellulózszármazékok molekuláris tulajdonságai és a különböző előállítási paraméterek (dózis, oldatkoncentráció, pH és sókoncentráció) hatását a géljellemzőkre, kiválasztva az optimális előállítási körülményeket. A tiszta cellulózszármazék rendszerek jellemzőit *N,N'*-metilén-biszakrilamid (MBA) térhálósító adagolásával, illetve a cellulózszármazék egy részének akrilsavra (AAc), illetve keményítőre cserélésével javítottam.

A géleket elsősorban a gélaránnyal és a duzzadásfokkal jellemeztem, továbbá a gélek kémiai összetételét (FTIR-ATR) és morfológiáját (SEM) is tanulmányoztam. Behatóbban foglalkoztam a duzzadással, meghatározva a duzzadáskinetikát, illetve a duzzasztószer tulajdonságainak hatását az egyes gélek duzzadására. A gyakorlati felhasználás vizsgálata érdekében különböző tesztoldatokban is mértem a legjobbnak bizonyult gélek duzzadását, majd összevetettem őket egymással, illetve különböző, kereskedelmi forgalomban kapható akrilát alapú szuperabszorbensekkel. Az alkalmazással kapcsolatos kutatás másik ágát a mezőgazdasági talajvizsgálatok képezték. Négy különböző helyről származó, jelentősen eltérő tulajdonságú talajba kevertem különböző mennyiségben szuperabszorbenst. Vizsgáltam egyrészt a gél jelenlétének hatását a talaj vízmegkötő képességére, a vízfelvételre és vízáteresztésre, másrészt meghatároztam, mekkora mennyiségben célszerű a géleket a talajba keverni a megfelelő mértékű talajjavítás érdekében.

3. Eredmények

Az ***egyes cellulózszármazékok gélesedési hajlama*** jelentősen eltért, ennek következtében pedig az optimális dózis és oldatkoncentráció is más volt. A karboximetil-cellulóz Na-sója esetében a láncon elhelyezkedő töltéseknek köszönhetően jó vízfelvételű gélek állíthatók elő, azonban a funkciós csoportok taszító hatása – a molekulaláncok közötti távolság növelése következtében – hátráltatta a térhálósodási folyamatot, kisebb gélarányt eredményezve. A másik három származék esetén ilyen hatás nem lépett fel, ezért a keresztkötések könnyebben kialakultak, a gélesedés is enyhébb körülmények közt játszódott le. A ***molekulatömeg*** szintén jelentős tényező volt: növelése a gélesedés szempontjából

előnyös. A megfelelő térháló csak egy adott kritikus elnyelt dózis és oldatkoncentráció felett alakult ki (**1. ábra**). A dózis növelése javította a gélesedést egy bizonyos fokig, azonban nagy dózisoknál a degradációs folyamatok kerültek előtérbe. Az oldatkoncentráció változtatásával egy optimális tartomány volt megfigyelhető: kis koncentrációknál a nagy lánctávolság, tömény oldatoknál a kis láncmobilitás rontotta a gélesedési hajlamot. A karboximetil-cellulóz gélesedését a közeg kémhatása és ionerőssége is befolyásolta. A duzzadásfok és a gélarány jellemzően egymással ellentétesen változtak az előállítási körülményekkel, ezáltal a két tulajdonság közti egyensúly (nagy vízfelvétel, elfogadható gélarány) megtalálása különösen fontos feladatnak bizonyult.



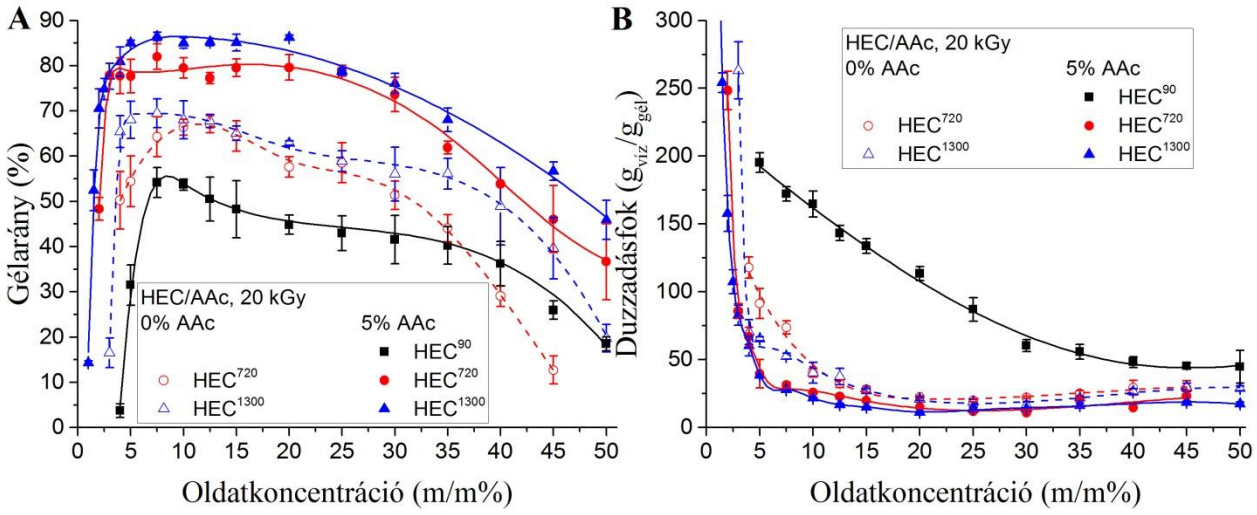
1. ábra A gélarány (A) és a duzzadásfok (B) változása a dózis függvényében különböző cellulózszármazék rendszereknél

A származékok közül a karboximetil-cellulózból sikerült a legnagyobb vízfelvétellel (200-250 $g_{víz}/g_{gél}$) rendelkező géleket előállítani (15-20 m/m%, 20 kGy), bár a gélarány viszonylag kicsi (35%) volt. A másik három származék esetén a vízfelvétel ettől elmaradt, azonban nagyobb mértékű gélesedés volt elérhető. A metil- és hidroxipropil származékoknál a hidrofób metil szubsztituens következtében a belőlük előállított géleknek viszonylag kis duzzadásfoka (20-25 $g_{víz}/g_{gél}$) volt, ezzel szemben a hidroxietil-cellulóz esetében a jó gélarányhoz (50-70%) lényegesen nagyobb vízfelvétel (~100 $g_{víz}/g_{gél}$) társult. Összességében tehát a négy származék közül ***a karboximetil-cellulóz és a hidroxietil-cellulóz*** bizonyult a legalkalmasabbnak szuperabszorbensek előállítására.

A gélesedés különböző adalékok jelenlétében nagymértékben javult. ***N,N'-metilén-biszakrilamid térhálósító*** adagolásakor a gélesedés jóval enyhébb reakciókörülményeket (kisebb dózist és oldatkoncentrációt) igényelt. A gélesedés a térhálósító mennyiségével nőtt, de már a cellulózszármazék tömegére vonatkoztatott 1% (m/m_p%) MBA is nagyon hatékonynak bizonyult. A legkedvezőbb tulajdonságok a dózis és oldatkoncentráció egyidejű

csökkentésével voltak elérhetők a tiszta cellulózszármazék rendszerekhez képest. Karboximetil-cellulóz rendszereknél 1 m/m_p% MBA adagolásakor megfelelően enyhe előállítási körülmények közt (7,5-10 m/m%, 5-10 kGy) mind a gélarány (35-45%), mind a duzzadásfok (250-350 $g_{víz}/g_{gél}$) javult az adalékmentes CMC-ból előállítható legjobb gélekhez képest.

A cellulózszármazék ***egy részének akrilsavra cserélése,*** a térhálósító adagolásához hasonlóan, kedvezett a térhálósodásnak (**2. ábra**). Bár az MBA-hoz képest nagyobb koncentrációra volt szükség, az akriláttal módosított rendszerek könnyebben gélesedtek és jobb tulajdonságokkal rendelkeztek. CMC alapú rendszerek esetében 10% akrilsav bizonyult optimálisnak, 7,5 m/m% oldatkoncentráció és 5 kGy dózis esetében az elérhető gélarány (40%) a térhálósítóval módosított rendszerekhez volt hasonló, ehhez azonban lényegesen jobb vízfelvétel (700 $g_{víz}/g_{gél}$) társult. A hidroxietil-cellulóz rendszereknél az akrilsav adagolása 5%-ig volt nagyon hatékony. Nagy molekulatömegű (1 300 000 Da) hidroxietil-cellulóz esetén már 2-2,5 m/m% koncentráció és 5 kGy dózis esetén 60-80% gélarányt és 150-300 $g_{víz}/g_{gél}$ duzzadásfokot lehetett elérni. A kopolimer géleknél az akrilsav komponens rövid idejű (15-30 s), szobahőmérsékletű lúgos semlegesítésével a vízfelvétel tovább nőtt. HEC/AAc rendszereknél a növekedés jelentős már 5% akrilsavtartalomnál is, ahol a vízfelvétel a 2,5-3-szorosára nőtt. A lúgos kezelés tehát egyszerű módszert kínál a szuperabszorbensek duzzadásának további javítására már kis mennyiségű akrilsavat tartalmazó géleknél is.

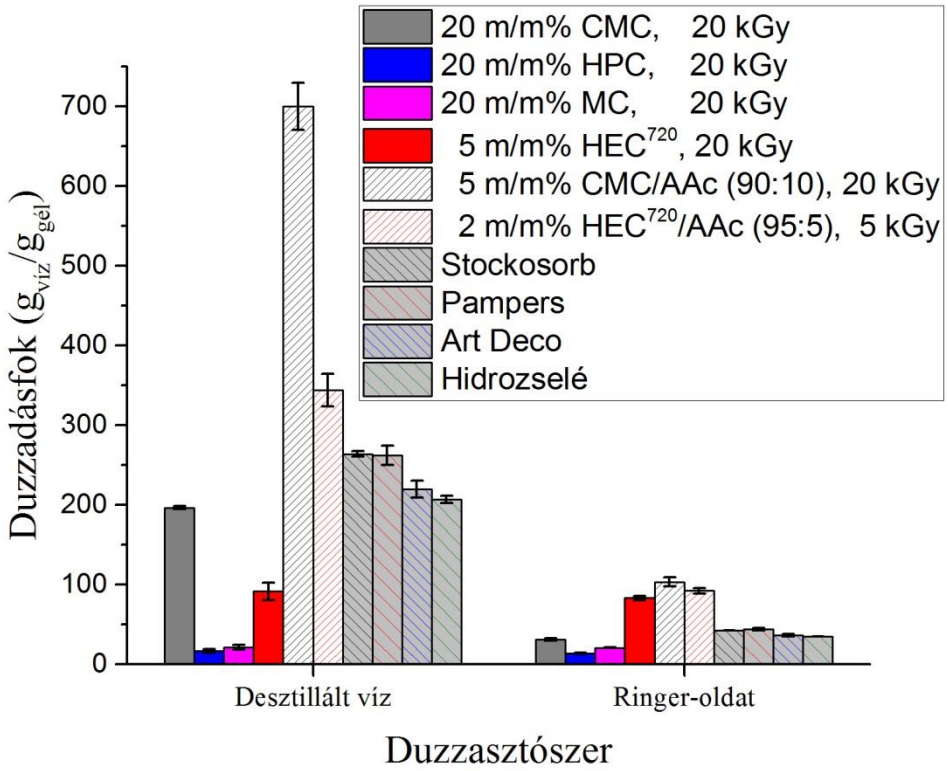


2. ábra A gélarány (A) és a duzzadásfok (B) változása az oldatkoncentráció függvényében hidroxietil-cellulóz/akrilsav rendszereknél

Karboximetil-cellulóz rendszerek esetén a származék ***egy részének keményítőre cserélése*** szintén kedvezően befolyásolta a géljellemzőket. A keményítő arányával a gélarány jelentősen nőtt, a vízfelvétel is kismértékben javult. A keményítő adagolása 30%-ig bizonyult kedvezőnek, nagyobb keményítőtartalom már a tulajdonságok romlásához vezetett. Az optimális előállítási körülmények – az akrilsavval módosított rendszerekkel szemben – nem tértek el lényegesen a tiszta CMC rendszerekétől. Nagy előny azonban, hogy a keményítő toxikus adalékok alkalmazása nélkül teszi lehetővé a géljellemzők javítását, miközben a nem módosított keményítő kedvező ára miatt az ilyen gélek felhasználása gazdaságilag is előnyösebb.

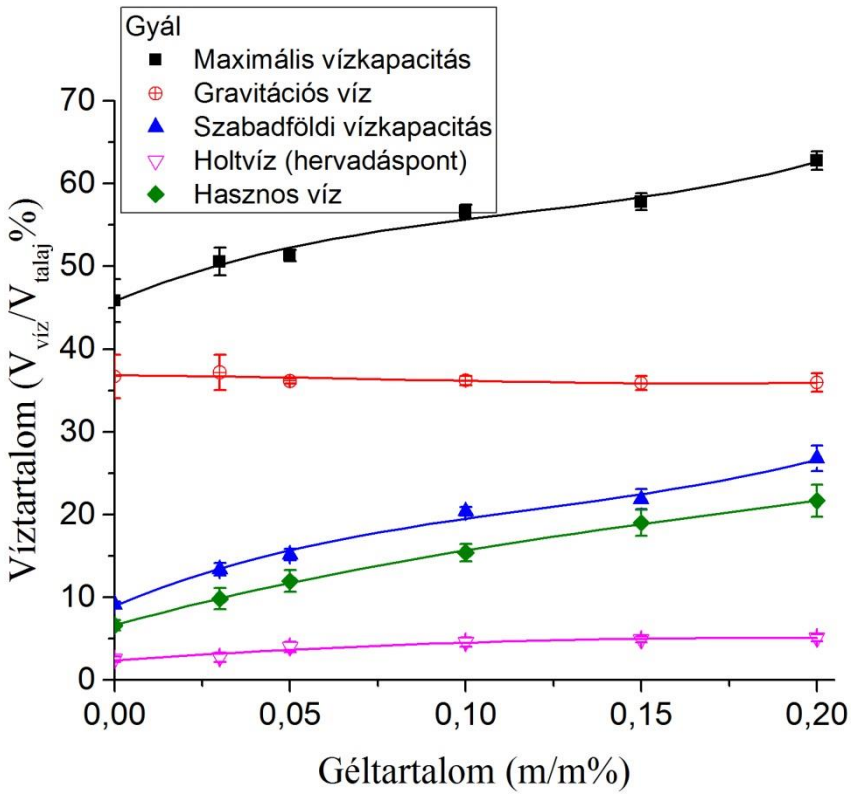
A különböző gélek esetében a ***duzzadáskinetika*** nagyon hasonlónak bizonyult. A folyamatot a Schott-féle másodrendű kinetikai modell minden esetben jól írta le, míg a Fick-i diffúziós modell alapján megállapítottam, hogy a víz diffúziójának mechanizmusa anomális volt. A karboximetil-cellulóz duzzadása nagyon érzékenyen reagált a ***duzzasztószer különböző jellemzőire (ionerősség, oldott só típusa, pH)***, ezzel szemben a másik három származék vízfelvétele nem mutatott függést ezektől a tulajdonságoktól. Kopolimer rendszerek esetében az összetétellel az érzékenység is jelentősen változik: hidroxietil-cellulóz/akrilsav rendszerek duzzadása már 5% akrilsav jelenlétében is jelentősen csökkent az ionerősség növelésével, míg a karboximetil-cellulóz/keményítő rendszereknél a keményítő mennyiségével az érzékenység mérséklődött. Ez lehetővé teszi az alkalmazási körülményeknek megfelelő tulajdonságok kialakítását.

Ennek jelentőségére mutatott rá a gélek jellemzőinek összevetése ***kereskedelmi forgalomban kapható szuperabszorbensekkel*** különböző duzzasztószerekben (**3. ábra**). A tiszta cellulózszármazékok közül a CMC gélek vízfelvétele az akrilátokéhoz hasonló volt, azonban só jelenlétében (pl. Ringer-oldatban) a duzzadásfokuk az akrilátokhoz hasonlóan jelentősen csökkent. A másik három származék közül a hidroxietil-cellulóz bizonyult a legjobbnak, mivel a viszonylag jó vízfelvétel és sótűrés következtében mind a CMC, mind kereskedelmi akrilát géleknél lényegesen több vizet vett fel nagy ionerősségű közegben is. Nagyon kedvezőek voltak emellett az akrilsavval képzett kopolimer gélek: bár az akrilsav jelenléte a HEC rendszereknél is reszponzív viselkedést eredményezett, a jóval nagyobb elérhető duzzadásfok következtében még a tesztoldatban is ezek mutatták a legnagyobb vízfelvételt. Ez különösen kedvező annak fényében, hogy a kopolimerek viszonylag kis (5-10%) koncentrációban tartalmaztak akrilsavat.



3. ábra Cellulózszármazék alapú, illetve kereskedelemben kapható, akrilát alapú szuperabszorbensek duzzadása desztillált vízben és Ringer-oldatban

A szuperabszorbens talajba keverése már kis, néhány ezrelékes koncentrációban is jelentősen javította a talaj vízmegkötő képességét (**4. ábra**). A gélek egyensúlyi vízfelvétele csökkent az öntözővíz és a talaj sótartalma következtében, de még ekkor is jelentős mennyiségű vizet vettek fel. A gél viszonylag erősen kötötte meg a vizet, amely a gravitáció hatására nem volt képes távozni a térhálóból, így a felső talajrétegben maradt. A talaj száradásával a gél fokozatosan leadta a vizet a környezetnek, a hervadáspontnál (a növény pusztulását eredményező kritikus vízkapacitás) pedig már csak minimális mennyiségű víz volt jelen a gélben. Ez rámutat arra, hogy a gél adagolásával nemcsak az adott talajréteg vízmegkötése nő, hanem az így megkötött folyadékot a növény szinte teljes mennyiségben hasznosítani tudja. A gél emellett jelentősen lelassította a talaj vízfelvételét, ezáltal hosszabb idő állt rendelkezésre a víz megkötésére. A talajjavító hatás különösen nagynak bizonyult a homokos, rossz vízmegkötésű talajok esetében.



4. ábra A vízkapacitás változása a géltartalom függvényében a gyáli homokos talajnál

4. Tézisek

1. Megújuló nyersanyagból készült biodegradálható szuperabszorbensek előállítására elsőként hasonlítottam össze különböző cellulózszármazékok oldatainak gélesedési hajlamát nagyenergiájú sugárzás hatására. Előállításukra a karboximetil-cellulóz (kiváló vízfelvétel) és a hidroxietil-cellulóz (jó gélesedés és duzzadásfok) rendszerek bizonyultak legalkalmasabbnak. A jó géltulajdonságok eléréséhez szükséges dózis és oldatkoncentráció a származéktól és annak molekulatömegétől függött. Karboximetil-cellulóz rendszereknél a kémhatás és ionerősség változtatása is lehetőséget adott a gélesedés befolyásolására. (I, IV)

2. Bizonyítottam, hogy a *N,N'*-metilén-bisz-akrilamid térhálósítót a cellulózszármazékhoz már 1 m/m_p%-os mennyiségben adva is a térhálósodási folyamat lényegesen enyhébb reakciókörülményeket igényelt. A paraméterek megfelelő megválasztásával mind a gélesedés mértéke, mind a vízfelvétel jelentősen javult az adalékmentes cellulózszármazék gélekhez viszonyítva. (II)

3. Elsőként határoztam meg, hogy a cellulózszármazék 2-10%-át akrilsavval helyettesítve nagyon kis dózis és oldatkoncentráció esetén is lejátszódik a gélesedés, illetve kis molekulatömegű, tiszta oldatként gélesedésre nem hajlamos származékokból is előállítható

hidrogél. A technológia különösen előnyösnek bizonyult nem-ionos cellulózszármazékok esetében, ahol a karboximetil-cellulóz szuperabszorbensekhez hasonló vízfelvétel volt elérhető kis oldatkoncentráció esetén. (III, IV)

4. Elsőként bizonyítottam, hogy karboximetil-cellulóz rendszereknél a származék legfeljebb 30%-ának keményítőre cserélése jelentősen javítja a gélarányt a vízfelvétel kismértékű növekedése mellett, míg az optimális előállítási körülményeket a keményítő jelenléte alig befolyásolta. A keverékek alkalmazásával emellett a gél előállítási költségei is csökkenthetők. (V)

5. Megállapítottam, hogy a különböző cellulózszármazékok felhasználásával készült gélek duzzadási jellemzői eltérően reagálnak a környezeti paraméterekre. A származék megfelelő megválasztásával, illetve kis mennyiségű akrilsav vagy keményítő adagolásával a külső körülményekkel szemben mutatott érzékenység a felhasználási követelményeknek megfelelően módosítható. (I, IV, V)

5. Alkalmazás

Kísérleteim igazolták, hogy az előállított cellulózszármazék alapú szuperabszorbensek jellemzői a kereskedelmi forgalomban elterjedt, főként akrilát alapú rendszerekéhez hasonlóak vagy akár azoknál jobbak, így környezetbarát alternatívát kínálnak velük szemben. A nem megújuló forrásból származó komponensek hiánya – kopolimereknél azok minimális koncentrációja – következtében különösen nagy potenciál rejlik mezőgazdasági alkalmazásukban, ahol a lassan lebomló akrilátok alkalmazása korlátozott. A kísérleti eredmények alapján a talaj vízmegkötő képességének javítására kiválóan alkalmazhatók már kis mennyiségben is: mind homokos, rossz vízmegkötő képességű talajok javítása, mind jó minőségű talajok öntözési igényének csökkentése megvalósítható. További nagy lehetőség rejlik a műtrágyák, illetve különböző növényvédő szerek szabályozott leadásában, ahol lényeges a hatóanyag leadása után a hidrogél mielőbbi lebomlása.

6. Közlemények

Az értekezés témájában megjelent közlemények

Angol nyelvű közlemények:

I. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Synthesis of cellulose derivative based superabsorbent hydrogels by radiation induced crosslinking. *Cellulose* 21:4157-5165 (2014) (IF: 3,573, független hivatkozások: 7)

II. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Synthesis of cellulose-based superabsorbent hydrogels by high-energy irradiation in the presence of crosslinking agent. *Radiat Phys Chem* 118:114-119 (2016) (IF: 1,315, független hivatkozások: 3)

III. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Synthesis of carboxymethylcellulose/acrylic acid hydrogels with superabsorbent properties by radiation-induced crosslinking. *Radiat Phys Chem* 124:135-139 (2016) (IF: 1,315, független hivatkozások: 1)

IV. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Synthesis and characterization of superabsorbent hydrogels based on hydroxyethylcellulose and acrylic acid. *Carbohyd Polym* 166:300-308 (2017) (IF: 4,811 (2016), független hivatkozások: 1)

V. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Synthesis of carboxymethylcellulose/starch superabsorbent hydrogels by gamma-irradiation. *Chem Cent J* 11:46 (2017) (IF: 2,442 (2016), független hivatkozások: 0)

Könyvfejezet:

1. Fekete, T., Borsa, J., Chapter 5: Polysaccharide-based polymer gels. In: Thakur, V. K., Thakur, M. J., Polymer Gels: Science and Fundamentals. Springer Singapore. ISBN:978-981-10-6085-4, *Nyomdában*

Magyar nyelvű közlemények:

1. Fekete, T., Takács, E., Borsa, J., Cellulóz alapú hidrogélek előállítása nagyenergiájú sugárzással. *Magyar Textiltechnika* LXVI. évf./3. szám, 110-114 (2013)

2. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Szuperabszorbens gélek előállítása cellulózszármazékokból. *Papíripar* LVIII. évf./4. szám, 3-7 (2014)

3. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Cellulóz alapú szuperabszorbensek előállítása és alkalmazása. *Műanyag- és Gumiipari Évkönyv* XIII. évf., 49-53 (2015)

Magyar nyelvű konferenciaközlemények:

1. Fekete, T., Takács, E., Wojnárovits, L., Borsa, J., Cellulóz alapú hidrogélek előállítása nagyenergiájú sugárzással. Őszi Radiokémiai Napok, 2013. október 16-18., Eger. Pp. 87-90. MKE, Budapest (ISBN:9789639970427) (2013)

2. Fekete, T., Takács, E., Wojnárovits, L., Borsa, J., Cellulóz alapú szuperabszorbens gélek előállítása nagyenergiájú sugárzással monomer jelenlétében. Őszi Radiokémiai Napok, 2014. október 13-15., Balatonszárszó. Pp. 58-61. MKE, Budapest (ISBN:9789639970502) (2014)

3. Fekete, T., Takács, E., Wojnárovits, L., Borsa, J., Karboximetil-cellulóz/akrilsav alapú szuperabszorbensek előállítása nagyenergiájú sugárzással. Őszi Radiokémiai Napok, 2015. október 19-21., Balatonszárszó. Pp. 53-57. MKE, Budapest (ISBN:9789639970595) (2015)

Angol nyelvű előadások:

1. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Synthesis of carboxymethylcellulose/acrylic acid hydrogels with superabsorbent properties by radiation-initiated crosslinking. *13th Tihany Symposium on Radiation Chemistry*, Balatonalmádi, Hungary, August 29-September 3, 2015

2. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Synthesis of cellulose derivative/acrylic acid superabsorbent hydrogels crosslinked by gamma-irradiation. *1st International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Budapest, Hungary, April 10-15, 2016

3. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Synthesis of cellulose derivative/acrylic acid hydrogels by radiation-initiated cross-linking. *The 12th Meeting of the Ionizing Radiation and Polymers Symposium (IRaP 2016)*, Peninsula of Giens, France, September 25-30, 2016

Magyar nyelvű előadások:

1. Fekete, T., Takács, E., Borsa, J., Cellulóz alapú hidrogélek előállítása és jellemzése. *MTA Természetes Polimerek Munkabizottságának és MTA Műanyagok Munkabizottságának konferenciája*, 2012. december 12., Budapest

2. Fekete, T., Takács E., Wojnárovits, L., Borsa, J., Cellulóz alapú hidrogélek előállítása nagyenergiájú sugárzással. *Őszi Radiokémiai Napok*, 2013. október 16-18., Eger

3. Fekete, T., Takács, E., Wojnárovits, L., Borsa, J., Cellulóz alapú szuperabszorbens gélek előállítása nagyenergiájú sugárzással monomer jelenlétében. *Őszi Radiokémiai Napok*,

2014. október 13-15., Balatonszárszó

4. Fekete,T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Gamma-sugárzással térhálósított cellulóz alapú szuperabszorbensek tulajdonságainak módosítása térhálósító adagolásával. *Fiatal Diplomások Fóruma*, 2014. november 25., Budapest

5. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Cellulóz alapú hidrogélek előállítása és jellemzése. *Oláh György Iskola XII. Konferenciája*, 2015. február 5., Budapest

6. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Karboximetil-cellulóz/akrilsav alapú szuperabszorbens gélek előállítása nagyenergiájú sugárzással. *Őszi Radiokémiai Napok*, 2015. október 19-21., Balatonszárszó

7. Fekete, T., Borsa, J., Takács, E., Wojnárovits, L., Karboximetil-cellulóz/akrilsav szuperabszorbens gélek előállítása gamma-sugárzással iniciált térhálósítással. *Fiatal Diplomások Fóruma*, 2015. november 24., Budapest

Poszterek:

1. Fekete, T., Takács, E., Wojnárovits, L., Borsa, J., Synthesis of cellulose-based superabsorbent hydrogels crosslinked by gamma irradiation. *International Conference on Bio-Friendly Polymers and Polymer Additives – From Scientific Aspects to Processing and Applications*, Budapest, Hungary, May 19-21, 2014

2. Takács, E., Fekete, T., Borsa, J., Wojnárovits, L., Synthesis of cellulose derivative based superabsorbent hydrogels. *The 12th Meeting of the Ionizing Radiation and Polymers Symposium (IRaP 2016)*, Peninsula of Giens, France, September 25-30, 2016

Egyéb, az értekezés témájához nem kapcsolódó közlemények

Angol nyelvű publikáció:

1. Takács, E., Wojnárovits, L., Koczog Horváth, É., Fekete, T., Borsa, J., Improvement of pesticide adsorption capacity of cellulose fibre by high-energy irradiation-initiated grafting of glycidyl methacrylate. *Radiat Phys Chem* 81:1389-1392 (2012) (IF: 1,375, független hivatkozások: 12)

Magyar nyelvű publikáció:

1. Fekete, T., Takács, E., Borsa, J., Szelektív adszorbens előállítása cellulózból nagy energiájú sugárzással iniciált ojtással. *Magyar Textiltechnika* LXV. évf., 2012/4, 115-117 (2012)

Magyar nyelvű konferenciaközlemény:

1. Fekete, T., Takács, E., Wojnárovits, L., Koczogné Horváth, É., Borsa, J., Cellulóz sugárzásos módosítása glicidil-metakrilát ojtásával. Őszi Radiokémiai Napok, 2012. október 8-10., Siófok. Pp. 49-54. MKE, Budapest (ISBN:9789639970274) (2012)

Magyar nyelvű előadás:

1. Fekete, T., Takács, E., Wojnárovits, L., Koczogné Horváth, É., Borsa, J., Cellulóz sugárzásos módosítása glicidil-metakrilát ojtásával. *Őszi Radiokémiai Napok*, 2012. október 8-10., Siófok