

A KVARC ADHÉZIÓJA SZERVES FOLYADÉKOKBAN

Doktori értekezés

Írta és a József Attila Tudományegyetem Természettudo-
mányi Karához benyújtotta

Patzkó Ágnes

okl. kémia-fizika szakos középiskolai
tanár

Szeged, 1968.



Diss: B 445



TARTALOMJEGYZÉK

BEVEZETÉS	1.
I. IRODALMI ÁTTEKINTÉS	2.
II. KISÉRLETI ANYAGOK ÉS KISÉRLETI MÓDSZEREK ; , . . .	17.
III. KISÉRLETI EREDMÉNYEK	
1./ Szakadási szög alifás alkoholokban	21.
2./ Szakadási szög ketonok és karbonsav- származékok homológ sorában	32.
3./ Szakadási szög aromás folyadékokban . . .	40.
4./ Szakadási szög néhány különböző molekula- szerkezetű szerves folyadékokban	48.
5./ Szakadási szög desztillált vízben	59.
IV. A KISÉRLETI EREDMÉNYEK ÉRTÉKELESE	62.
ÖSSZEFOGLALÁS	74.
IRODALOMJEGYZÉK	76.

BEVEZETÉS

Szilárd részecskék tapadása sík felületen mind elméleti mind gyakorlati szempontból fontos kérdés. Sokan foglalkoztak a tapadást befolyásoló tényezők kísérleti vizsgálatával, azonban számos probléma máig is tisztázatlan.

A tapadókéesség diszperzitásfok függvényét is többen mérték főleg gáznemű és vizes közegekben, általános érvényű összefüggés azonban nem ismeretes. Az irodalmi áttekintésből kitűnik, hogy folyékony közegekben mért tapadásra igen kevés adat áll rendelkezésünkre. Ezért látszott célszerűnek szakadási szög méréseket végezni különböző molekulaszervezetű és polaritású szerves folyadékokban homodiszperz kvarc frakciókkal.

Dolgozatomat a József Attila Tudományegyetem Kolloid-kémiai Tanszékén készítettem. Ezuton is hálás köszönetemet fejezem ki mind Dr.Szántó Ferenc egyetemi docens, tanszékvezetőnek, mind Dr.Várkonyi Bernát egyetemi adjunktusnak, dolgozatom tárgykörének kijelöléséért, valamint messzemenő támogatásukért és értékes tanácsaikért.

I. IRODALMI ÁTTEKINTÉS

Azokat az erőket, amelyek egymással szemben levő felületek között működnek és a felületeket egymással egyesíteni igyekeznek, adhéziós erőknek, magát a jelenséget pedig adhéziónak nevezzük /19/. Azt, hogy az adhézió nem tömegvonzás, hanem a felületek kölcsönhatása, bizonyítja Buzágh tapadási szám vizsgálatai /1, 3, 19, 21/.

Mikroszkópos vizsgálatokra alkalmas kis kamrában, amelynek egyik fala kvarclemes, vízben vagy elektrolit oldatban e kvarc falra különböző méretű részecskéket tartalmazó kvarc szuszpenziót ülepitett, majd meghatározott várakozási idő elteltével a kamra 180°-os elforgatása után meghatározta a felületen tapadt részecskék számát. Ismervén az ülepitett részecskék számát is definiálta az un. tapadási számot:

$$H_t = Z_t \frac{100}{Z_0} \%$$

ahol Z_t = t idő után tapadva maradt részecskék száma,

Z_0 = a részecskék össz-száma.

Megállapította, hogy

1./ azonos körülmények között csakis egy meghatározott nagyságnál kisebb kvarcrészecskék maradnak tapadva a kvarclemezen,

2./ a részecskék tapadóképesége függ a diszperziós közegtől és a felületek sajátosságaitól.

Minden anyag, amely a felületeken adszorbeálódik, megváltoztatja a tapadóképességet.

3./ A különböző anyagi tulajdonságú részecskék azonos felületen különböző tapadóképességet mutatnak.

4./ Kis részecskékénél - $r = 2-3 \mu\text{m}$ - időeffektus lép fel: a tapadási szám annál nagyobb, minél hosszabb ideig érintkeznek a részecskék az adhéziós felülettel.

5./ Vizes elektrolitoldatokban a részecskék tapadási száma és elektrokinetikai potenciálja általában antagonizmust mutat. Izoelektromos pontban a tapadási szám maximumot ér el.

Az e gységnyi felületen működő adhéziós erő az un. fajlagos adhézió. Ha a részecskék gömbalakúak és az alappal való érintkezési felületet azonosnak vesszük a gömb vetületével, a fajlagos adhéziót a következő egyenlet fejezi ki:

$$r^2 \pi p = \frac{4}{3} r^3 \pi / \varrho_1 - \varrho / g$$

ahol p = fajlagos adhézió,

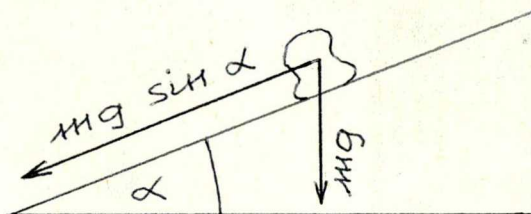
r = a részecskék sugara,

ϱ_1 = a részecskék sűrűsége,

ϱ = a diszperziós közeg sűrűsége,

g = a nehézségi gyorsulás.

Durva részecskék fajlagos adhéziója tapadási szám mérésével nem határozható meg, mivel ezen részecskék súlya nagyobb mint a részecskék és az alaplap közötti tapadóerő. Ezért ilyen nagyságú részecskék adhézióját Buzágh az általa szerkesztett szakadási szögmérő készülékkel mérte /4, 21/. A szakadási szögmérés módszerénél a részecskék leszakadása az alapról a gravitációs erő egyik komponensének hatására történik.



Egy meghatározott anyagi minőségű lapra ülepített egyszeres részecskeréteg szakadási szöge az a legkisebb szög, amelynél a részecskeréteg éppen elveszti homogenitását annak következtében, hogy a részecskék a felületről lecsusznak illetve "leszakadnak". Az alapréteg homogenitása megszűnik, ha az összefüggés

$$r^2 \pi p = \frac{4}{3} r^3 \pi / \rho_1 - \rho / g \sin \alpha$$

teljesül, ahol α a szakadási szöget jelenti.

Különböző porokkal /kvarc, aragonit, márvány, kalcit/ végzett vizsgálatai a következő megállapításokhoz vezettek /4, 5, 6, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 18, 19, 21/:

1./ A fajlagos adhézió azonos körülmények között csak a tapadó részecskék anyagi minőségétől függ.

2./ A fajlagos adhézió részecskemérettől való függését az adszorpciós rétegek különböző mérvű deformációja okozza. Megállapította, hogy vizes elektrolit-oldatokban a fajlagos adhézió a részecskeméret növelésével minimum-maximum-görbe vagy maximum-görbe szerint változik.

3./ Folyékony közegekben az adhéziót megszabják az adszorpciós réteg sajátosságai, mégpedig:

a/ vízben és vizes elektrolit-oldatokban az elektromos kettősréteg két fő jellemzője: az elektromos töltés nagysága és a réteg vastagsága. E két sajátosság a felületek elektrokinetikai potenciálját is megszabja; ezzel értelmezhető az adhézió és az elektrokinetikus potenciál közötti párhuzamosság. E párhuzamosság abban nyilvánul meg, hogy az elektrokinetikus potenciálnak pl. elektrolitokkal előidézett növekedése az adhézió csökkenésével, csökkenése pedig annak növekedésével jár. Izoelektromos állapotban - egyébként azonos körülmények között - az adhézió mindig maximális. Ez világosan bizonyítja az elektrosztatikus taszítóhatás szerepét.

A kettősréteg vastagságának befolyása mechanikai hatáson alapul. Jellegzetesen kifejezésre jut ez a hatás az izoelektromos állapotú kvarc adhéziójánál alkoholos közegben. Egyértékű alkoholban a három- és négyértékű kationok a kvarc felületét épp úgy áttöltik, mint vizes közegben. Vízben azonban az izoelektromos állapotban a kvarc adhéziója maximális, alkoholos közegben viszont minimumot mutat.

Az Al- és Th-ionok abban a töménységben, melyben vizes oldatok esetén csökkentik, alkoholos közegben növelik a kvarc adhézióját. Az adhézióknak az izoelektromos pontban alkohol hatására történő csökkenése azzal magyarázható, hogy ekkor a kvarcfelület legkevésbé hidrophil, de a legnagyobb mértékben lipofil, ezért az alkoholmolekulákat nagymértékben adszorbeálja, úgy, hogy a hidrofob alkilgyök kapcsolódik a kvarc felületéhez. Miután az alkoholmolekulák erősen hajlamosak láncszerű asszociátunok létesítésére, az asszociáció természetesen az adszorbeált alkoholmolekulák között is fellép, így vastag, polimolekulás adszorpciós rétegek jöhetnek létre, amelyek az adhéziót csökkentik.

A különböző elektrolitok a kvarc adhézióját kétféleképpen befolyásolják:

I. Az egy- és kétértékű kationokat tartalmazó elektrolitok a koncentráció növekedésével csak növelik a kvarc adhézióját, mivel elektromos töltését csökkentik.

II. Magasabb értékű kationokat tartalmazó elektrolitok először növelik, majd egy maximumon át csökkentik a kvarc tapadóképességét. Az elektromos töltés ezzel ellentétesen változik: először csökken, majd minimumot ér el /a kvarc izoelektromos állapotba kerül/, majd a koncentráció növelésével a kvarc felülete áttöltődik.

b./ Organikus folyadékokban és nem elektrolitok vizes oldataiban az adhézió nagyságát az adszorpciós réteg, a lioszféra vastagsága és szerkezete szabja meg: minél liofilebb a felület, annál kisebb az adhézió. Poláris felületek tapadása tehát apoláris folyadékokban igen nagy és poláris komponensekkel jelentősen csökkenthető.

4./ Az adhéziós erők amikroszkópos méreteknél nagyobb távolságban is hatékonyak. A tapadó részecskéket egymástól és a felülettől sok esetben szubmikroszkópos vastagságú folyadékrétegek választják el. Ezt bizonyítják az üledéktér-fogat és belső surlódás mérések is /6, 8, 14, 15, 16, 20/.

Gáznemű és folyékony közegben a szilárd testek felületének kölcsönhatásánál két tényezőnek van mérvado szerepe:

a/ A felületek közvetlen kölcsönhatása a két test felületén lévő saját ionjainak, atomjainak illetve molekuláinak elektrosztatikus, polarizáló és diszperziós hatásán alapul.

b/ A felületeken lévő adszorpciós rétegek kölcsönhatása, amely növelheti vagy csökkentheti az adhéziót. Ez a hatás az adszorpciós rétegek természetétől függ, tehát attól, hogy elektromos kettősréteg, molekulákból álló lioszféra, vagy ionokból és az oldat molekuláiból álló szolvátréteg alakult ki a felületeken. A legáltalánosabb esetben az adszorpciós réteg elektromos kettősrétegből és lioszférából áll. Ez esetben az adszorpciós réteg az adhéziós csökkenti. Az adszorbeált ionok töltést adnak a felületnek, így a felületek

taszítják egymást, de az adhéziót nem szüntetik meg, vagyis az adhézió sohasem negatív. A csupán lioszférával körülvett részecskék esetén, bár a lioszférák mechanikai ellenállása gátolja a felületek közvetlen érintkezését, nincs akadálya annak sem, hogy a felületek lioszférái egymásba olvadva egy folytonos réteget képezzenek. A lioszférák egybeolvadása annál inkább lehetséges, minél vastagabbak.

Buzágh és munkatársai /8, 14, 16/ megállapították, hogy vizes elektrolit oldatokban párhuzamosság mutatkozik az adhézió, a kvarc szuszpenziók stabilitása, üledéktérfogata, belső surlódása valamint folyadékáteresztő képessége között. Koaguláltató elektrolitok hatásár a növekvő adhéziónak növekvő üledéktérfogat, belső surlódás, folyadékáteresztőképesség értékek felelnek meg.

Összefoglalva Buzágh megállapította, /21/, hogy az adszorpciós réteg diffúz strukturája, illetve a részecskék és diszperziós közeg közötti kontinuitás mérvadó leginkább az adhéziós erőkre.

Gyerjagin és Lazarev /7/ vizsgálták az általuk szerkesztett készülékkel elsősorban az üveg és parafin közötti surlódást. Érvényesnek találták az

$$F = \mu/N + g_0 S /$$

illetve

$$f = \mu/g + g_0 /$$

összefüggést, ahol F a surlódási erő, N a két testet egymáshoz nyomó erő nagysága, μ a surlódási koefficiens,

S a feltételezett érintkezési felület, g az erre ható nyomás, f a specifikus surlódási erő: $f = \frac{F}{S} \cdot g_0$ olyan konstans, amely csak a felületi tulajdonságoktól függ és a specifikus adhézió értékét megközelíti.

Másrészt vizsgálták egy általuk konstruált szakadási szögmérő készülékkel poroknak különböző alaplapon való elcsuszását és megállapították, hogy ezekre a rendszerekre is érvényes a fenti összefüggés.

A porok szakadási szögének $\angle$ mérési eredményeire érvényes a

$$P \sin \angle = \mu / P \cos \angle + g_0 S /$$

összefüggés, ahol a részecskék P súlya arányos az átmérőjük harmadik hatványával, vagyis $P = k \cdot d^3$, a feltételezett érintkezési felület pedig a részecskeátmérő négyzetével arányos, azaz $S = l \cdot d^2$. Tehát

$$\operatorname{tg} \angle = \mu / l + \frac{l g_0}{k} \frac{1}{d \cos \angle} /$$

egyenlethez jutottak. A $\operatorname{tg} \angle = f / \frac{1}{d \cos \angle}$ függvény iránytangense megadja a $\mu \frac{l g_0}{k}$ értékét, mely minden anyagra nézve egy jellemző konstanst szolgáltat és arányos a részecskék tapadóképességével, az egyenes ordinátametszete pedig μ értékre ad felvilágosítást.

Palmer és Rideal /22/ mérték különböző minőségű azonos diszperzitásfokú részecskék tapadási számát nedvesítőszerek vizes oldataiban a Buzágh-féle tapadási szám meghatározására szolgáló készülékkel.

Vizsgálták, milyen befolyást gyakorol az adhéziós szám értékeire a részecskék illetve lemez hidrophil vagy hidrophob jellege. Abban az esetben, ha a hidrophobizált részecskéket és lemezt alkalmaztak, a detergens koncentrációjának növelésével az adhéziós szám minimum-görbe szerint változott. Kis koncentrációknál orientált adszorpció útján létrejött monomolekulás film keletkezésével magyarázzák az adhézió csökkenését, nagyobb koncentrációk esetén a szilárd határfelületeken micellyszerű kapcsolódások jöhetnek létre és ez eredményezi az adhézió növekedését.

Cremer, Conrad és Kraus /23/ kísérleti berendezésükben egy porral beszórt lapot φ szöggel megdőntöttek, az anyag lecsuszásáig. A lecsuszás pillanatában az erőkomponens a tömegvonzás következtében egyenlő a tapadósurlódással.

Érvényes az

$$m \cdot g \sin \varphi = \mu \cdot m \cdot g \cos \varphi$$

összefüggés, ahol m a tömeg /kg/, g a nehézségi gyorsulás /m/sec²/, φ a csuszási szög, μ a surlódási együttható.

Tiszta tapadó surlódásnál az $m \cdot g \cdot \sin \varphi = f / m \cdot g \cdot \cos \varphi$ függvény a kordináta rendszer középpontján átmenő egyenest ad. Az egyenes iránytangenséből a surlódási együttható kiszámítható.

$r \leq 100 \mu$ sugarú részecskék esetén az egyenes meghatározott értéknél metszi az ordinátát, mely a por és alaplap közötti H tapadóerő értékét adja meg. Különböző mennyiségű felszórt homodiszperz por esetén érvényesnek

találták az

$$m.g.\sin\varphi = \mu m.g.\cos\varphi + H \quad \text{összefüggést.}$$

Megállapították, hogy a felületegységre eső tapadóerő a részecske átmérőjével fordítottan arányos:

$$H = \frac{h.A}{d}$$

ahol A a por által elfoglalt terület, d a részecskeátmérő, h pedig egy arányossági tényező /din/cm-ben/, amely a por és alaplap minőségétől függ. Ez az ún. tapadási feszültség.

Vizsgálataik szerint a tapadóerő a por és alaplap kezelésétől, a részecske átmérőjétől és alakjától, valamint az alkalmazott atmoszférától függ.

Batel /24/ különböző diszperzitásfokú kvarcfrakciókkal végzett vizsgálatokat, változtatva a külső körülményeket is. Eredményei összhangban vannak az előző szerzők vizsgálataival /23/.

Megállapította, hogy a tapadóképesség nem anyagi állandó, mert a kísérleti körülmények is befolyásolják.

Kimutatta, hogy az adhéziós erőkkel való tapadást valójában a szilárd felületeken lévő adszorpciós rétegek és az elektromos töltések okozzák. Megállapította, hogy a tapadóképességet befolyásolja az adszorpciós réteg vastagsága is.

Patat és Schmid /25/ vakuumban és gázfázisban mérték a szilárd részecskék száraz tapadóképességét Cremer és munkatársai /23/ módszerével. Vizsgálataik szerint a tapadó-

képesség és a részecskék mérete között érvényes a következő összefüggés:

$$\log H_0 = B \log \frac{1}{d} + \log C$$

ahol H_0 a specifikus adhézió, melyet a fenti szerzők szerint definiáltak, d a részecskeátmérő, B és C anyagi konstansok. Megállapították, hogy mind a tapadóképesség, mind a surlódási koefficiens értékére befolyást gyakorolnak: a kísérleti feltételek, a részecskenagyság, a felületi sajátságok, így az adszorpciós rétegek és a töltésviszonyok is.

Zimon és Gyerjagin /26, 27/ vizsgálták a tapadóképességet szakadási szögmérése alapján, illetve nagy adhéziójú porok esetén a lemezen centrifugálás után tapadva maradt részecskék számának meghatározásával. Az adhéziós erőt az

$$F = V \cdot g / \varrho_s = \varrho_f / \sin \alpha$$

formulával határozták meg, ahol V a részecske térfogata, ϱ_s illetve ϱ_f a részecskék illetve diszperziós közeg sűrűsége. Centrifugás vizsgálatok esetén g helyett a centrifugális gyorsulás értéke szerepel.

Megállapították a következőket:

1/ Vizes közegben a tapadási erő kisebb mint a levegőben mért érték.

2/ A tapadási erő függ a felületre való felvitel módjától.

3/ Híg elektrolit oldatokban végzett méréseik eredményei igazolták Buzágh /19, 21/ ilyen vonatkozású megállapításait.

4/ Nagy /65-100%/ relativ nedvességtartalmú levegőben az üvegporrészekké tapadási ereje a felületek közötti hézagokban bekövetkező kapillárkondenzáció miatt megnövekszik a kisebb relativ nedvességtartalmú levegőben mért értékekhez viszonyítva.

5/ 100 % relativ nedvességtartalmat megközelítő levegőben a részecskék többségére jellemző tapadási erő a kapilláris erőknél kisebb, ami a felületek közötti hézagokban lévő vékony folyadékréteg feszítő nyomásáról tanuskodik.

6/ Tapadási hiszterézist mutattak ki olyan esetekben, amikor a vizsgálatokat a levegő nedvességtartalmának növekedése, majd csökkenése esetén hajtották végre. A tapadás különbözősége azt bizonyítja, hogy a kapilláris kondenzáció és a hézagokban lévő nedvesség elpárolgása nem egyértelmű folyamat. Ez nyilvánvalóan összefügg a kapillárisokban lévő vékony folyadékrétegek sajátásaival.

Fraknóy és Szabó /30, 31/ vizsgálták a tapadóképesség és elektrokinetikai potenciál közötti összefüggéseket szintetikus apatit frakciókkal apoláris-poláris folyadékok elegyeiben. A tapadóképességet a Buzágh-féle szakadási szögmérővel vizsgálták, az elektrokinetikai potenciál mérésére elektrooszmotikus módszert dolgoztak ki.

Megállapították, hogy a tapadóképesség és az elektrokinetikai potenciál organikus közeg esetén is antiparallel változik és a változás méréke függ a diszperziós közeg

szerkezetétől és polaritásától, valamint a por diszperzitástokától.

Kimutatták, hogy Patat és Schmid /25/ által száraz porokra vákuumban kapott összefüggés a fajlagosadhézió és a részecskeméret között - a mért részecskeintervallumban - a tiszta organikus közegekben mért tapadásra is kielégítően alkalmazható.

Krupp és munkatársai /34, 35, 36, 37/ a legutóbbi években részletesen foglalkoztak az adhézió, főként a száraz tapadás elméletével. Kísérletileg centrifugás módszerrel mérték különböző alaplapon különböző méretű és minőségű részecskék adhézióját, levegőben és nitrogén atmoszférában, továbbá vízben és nedvesítőszeres vizes oldataiban.

Kimutatták, hogy legnagyobb tapadóerő levegőben mérhető, víz jelenlétében csökken a tapadás, tenzid oldatokban pedig további csökkenés mutatkozik. A tapadóerőt arányosnak találták a részecskemérettel.

Folyékony közegű rendszereknél a kölcsönhatásba kerülő szilárd felületek közötti tapadóerők a száraz adhézió nagyságának meghatározására a kidolgozott összefüggés segítségével abban az esetben számíthatók, ha a szilárd felület és gömb távolsága a gömb R sugarának csak hányada. Ezen feltétel teljesülése esetén a van der Waals vonzóerő

$$F_{vdW}^0 = \frac{\hbar \overline{\omega} R}{8\pi z_0^2}$$

ahol $\overline{H\omega}$ a Lifshitz-van der Waals-féle konstans /32/, z_0 a maximális adhéziós erőknek megfelelő távolság, R a gömb sugara. A vonzó erők számításánál korrekcióba kell venni a taszító erőket:

$$F_1^0 = - 64 \pi N_1 k T \delta_1$$

$/N_1$ a folyadék egységnyi térfogatában oldott ionok száma, δ_1 a kettősréteg vastagsága, k a Boltzmann állandó, T hőmérséklet/.

Kísérleti eredményeikből kitűnik, hogy folyékony közegű rendszereknél a tapadóerő a kontakt idővel növekszik. A jelenség a szilárd felületek között kialakuló vékony folyadékfilmek tulajdonságaival hozható kapcsolatba. A vékony folyadékfilmekkel végzett kísérletek, /Fuksz /29/ Gyerjagin /28/ Böhme /33/ eredményei kvalitatív magyarázatot szolgáltatnak az időhatásra:

Ha a kölcsönhatásba kerülő szilárd felületek közötti taszítóerőkkel szemben a van der Waals erők dominálnak, akkor a felületeket közelíteni igyekeznek. E közelítés ellen lép fel nagy kinetikus akadály, amely valószínűleg annak tulajdonítható, hogy a filmréteg elvékonyodása időtől függő folyamat.

Véleményük szerint a nedvesített rendszerek adhéziójának mérésére a tapadási szám és szakadási szög mérésének módszere /Buzágh /1, 2, 3, 8/ Palmer és Rideal /22/ Kőrös és Szabó /30, 31// elméletileg nem könnyen értelmezhető kísér-

leti adatokat eredményez. Ennél a mérési módszernél olyan jelenségek gátolják a valódi adhézió meghatározását, mint a részecskék és az alaplap közötti folyadék elmozdulása illetve a szilárd és folyadék határfelület szerkezeti, összetéti változása.

Részletesebb következtetéseket lehetne levonni ilyen természetű mérésekből, ha olyan eredmények állnának rendelkezésre, amelyekben variálták volna:

- 1/ a kontakt időt,
- 2/ a szakadási szögmérő alaplapjának emelési sebességét,
- 3/ tapadási szám mérésnél a kuvetta megfordítása utáni várakozási időt.

Megállapították, hogy folyékony közegben az adhéziós erők elméletének tisztázásához elsősorban az adszorpció elméletét kellene behatóbban vizsgálni, hogy ismeretek legyenek azok az intermolekuláris erők, amelyek a folyadékokban lévő szilárd test és folyadék, továbbá pedig az adszorpció rétegek között fel lépnek.

II. KISÉRLETI ANYAGOK ÉS KISÉRLETI MÓDSZEREK

Kísérleteimet álló ülepitéssel elválasztott homodiszperz kvarc frakciókkal végeztem. A frakciók részecskeméretét mikroszkóppal ellenőriztem.

A felhasznált szerves folyadékok p.a. minőségű REANAL készítmények voltak.

A szakadási szög meghatározásához Buzágh-féle szakadási szögmérő készüléket használtam /1. ábra/. A készülék egy szögmérő előtt vízszintes tengely körül elforgatható asztalkából áll, amelyre kb. $4 \times 4 \text{ cm}^2$ -es üveglapon kb. 8 cm magas, 23 mm átmérőjű csiszolt alapú üvegkuvettát erősítettem fémgyűrű segítségével tömítés nélkül.

Az üvegrészeket mérés előtt analitikai tisztaságú tömény sósavban majd desztillált vízben kifőztem, ezután desztillált vízzel mindaddig mostam, amíg a desztillált víz pH-ja változatlan maradt. Utána gondosan kiszáritottam.

A készülék összeállítása után a kuvettát a diszperziós közeggel alaposan kiöblítettem. Az így előkészített kuvettába bemértem a légszáraz kvarcport, ráöntöttem 15 ml diszperziós közeget, benne szemcseppentő pipettával felsuszpendáltam a kvarcport és a kvarcrészecskéket a vízszintes fekvő üveglapra hagytam ülepedni. Az aszfalkán elhelyezett vízszintmérőt minden felsuszpendálás után ellenőriztem.

A bemérést a diszperzitásfoknak megfelelően úgy választottam meg, hogy a 15 ml szuszpenzióból kiüledett részecskék egyszeres réteget képezzenek az alaplapon. Hogy a részecskékből kialakult réteg biztosan egyszeres legyen, a beméréseket néhány százalékkal kisebbre választottam, mint a számított értékek /I.táblázat/.

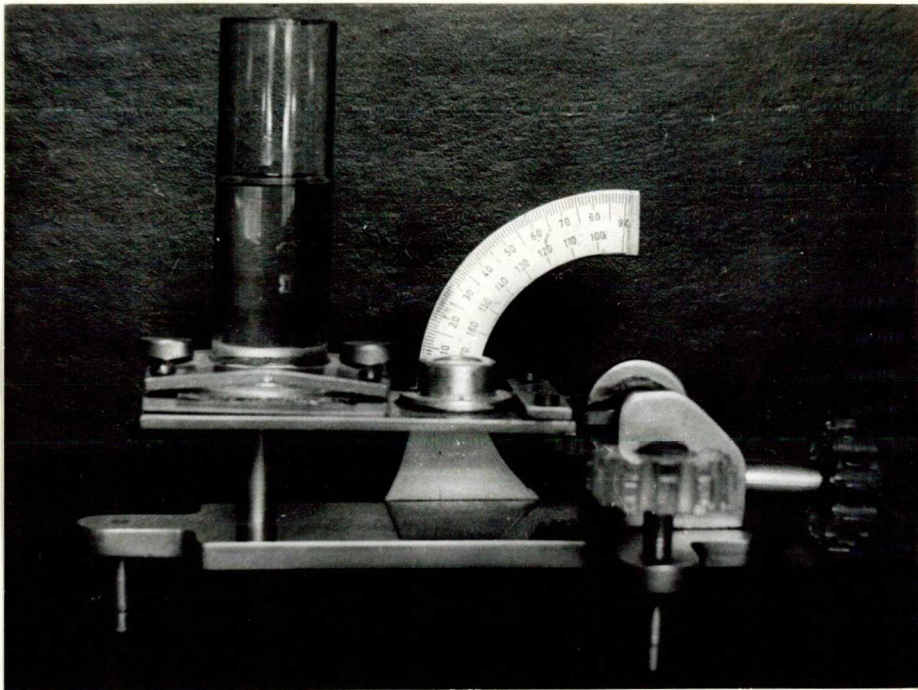
A részecskék teljes kiüledése után az asztalkát a vízintestől a csavar segítségével addig forgattam el, amíg a kvarcréteg homogenitása meghatározott szögnél megtört és a részecskék lecsusztak, "leszakadtak" a lejtőn.

Az a szög, amelynél ez a leszakadás, lecsuszás szabad szemmel is jól láthatóan fellépett, az un. szakadási szög.

Azonos kísérleti körülmények között - azonos üleptési idő, azonos hőmérséklet és az asztalka dőlési szögének azonos sebességgel történő növelése mellett - a szakadási szög $\pm 2^\circ$ pontossággal reprodukálható.

1. ábra

Buzágh-féle szakadási szögmérő készülék



I. táblázat

A bemért homodiszperz kvarcfrakció mennyisége

/4,15 cm² alapfelületre, 15 ml közegben/

Részecskeátmérő d / μ m/	Átlagos részecskesugár r / μ m/	Bemérés /mg/
5-10	3,75	5,5
10-20	7,50	11,0
20-40	15	22,0
40-60	25	35,0
60-80	35	51,0
90-110	50	73,0
140-180	80	117
225-250	120	170
275-300	140	200

III. KISÉRLETI EREDMÉNYEK

Kísérleteim során megvizsgáltam, hogyan változik a részecskemérettel a homodiszperz kvarc szakadási szöge vízben és különböző molekulaszervezetű illetve polaritású szerves folyadékokban.

1. Szakadási szög alifás alkoholokban

Az alifás alkoholok homológ sorozatának tagjaiban a kvarc szakadási szögének szinusza növekvő részecskemérettel minimum-maximum- vagy folytonosan csökkenő görbék szerint változnak. A kísérleti eredményeket a II.-IX. táblázat és a 2. ábra mutatja.

A kísérleti eredményekből látható, hogy az alkoholok szénatomszámának növekedésével a tapadóképesség növekszik. Kis szénatomszámú alkoholokban a szakadási szög minimum-maximum-görbe szerint változik a részecskemérettel. A tapadóképesség minimuma $r = 5 \cdot 10^{-4}$ cm, maximuma pedig $r = 30 \cdot 10^{-4}$ cm sugárméretnél található, a részecskeméret további növekedésével az adhézió kismértékben csökken.

A magasabb szénatomszámú alkoholokban a szakadási szög szinuszának értékei növekvő részecskemérettel folytonosan csökkenő görbe szerint változnak. Kis részecskénél - $r \leq 25 \cdot 10^{-4}$ cm - meredeken csökkenő tendenciát mutat a tapadóképesség, a részecskeméret további növekedésével a csökkenés mértéke kisebb és határértékhez tart. A kezdeti csökkenő

szakasz meredeksége a szénatomszám növekedésével csökken, a propil- és a butilalkohol hatása átmeneti jellegűt mutat a kis és a nagy szénatomszámú alkoholok között.

Az eredményekből kitűnik, hogy a vizsgált részecskeméret intervallumban a $25 \cdot 10^{-4}$ cm-nél kisebb sugarú részecskék tapadóképeségét az alkohol szénatomszáma nagymértékben befolyásolja, ugyanakkor a $25 \cdot 10^{-4}$ cm-nél nagyobb sugarú részecskék esetén nincs jelentős különbség.

II. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel metilalko-
holban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	20	0,3420
7,50	20	0,3420
15	26,5	0,4462
25	36	0,5878
35	37,5	0,6088
50	35,5	0,5807
80	30,5	0,5075
120	28,5	0,4772
140	26	0,4384

III. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel etil-alkohol-
ban

Részecskesugár $r / 10^{-4} \text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α °	$\sin \alpha$
3,75	25	0,4226
7,50	24	0,4067
15	31	0,5150
25	38	0,6157
35	38	0,6157
50	36	0,5878
80	33	0,5446
120	31,5	0,5225
140	30,5	0,5075

IV. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel propil-
alkoholban

Részecskesugár $r / 10^{-4} \text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	45	0,7071
7,50	45	0,7071
15	40	0,6428
25	38	0,6157
35	39	0,6293
50	38,6	0,6239
80	36	0,5878
120	34	0,5592
140	33	0,5446

V. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel butil-
alkoholban

Részecskesugár $r / 10^{-4} \text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	48	0,7431
15	43,5	0,6884
25	42	0,6691
35	40,5	0,6494
50	39	0,6293
80	36	0,5878
120	33	0,5446
140	34	0,5592

VI. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel amfálko-
holban

Részecskesugár $r / 10^{-4} \text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	$> 0,96$
7,50	54	0,8090
15	44	0,6947
25	41	0,6561
35	38,3	0,6198
50	37,7	0,6115
80	36	0,5878
120	34	0,5592
140	35	0,5736

VII. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel hexilalko-
holban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	$> 0,96$
7,50	58	0,8480
15	49,5	0,7604
25	41,5	0,6626
35	41	0,6561
50	38,8	0,6266
80	35,3	0,5779
120	33,5	0,5119
140	32,8	0,5417

VIII. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel heptil-
alkoholban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	$> 0,96$
7,50	59,4	0,8607
15	50	0,7660
25	45	0,7071
35	42,2	0,6717
50	39,4	0,6347
80	35,3	0,5779
120	34	0,5592
140	32	0,5299

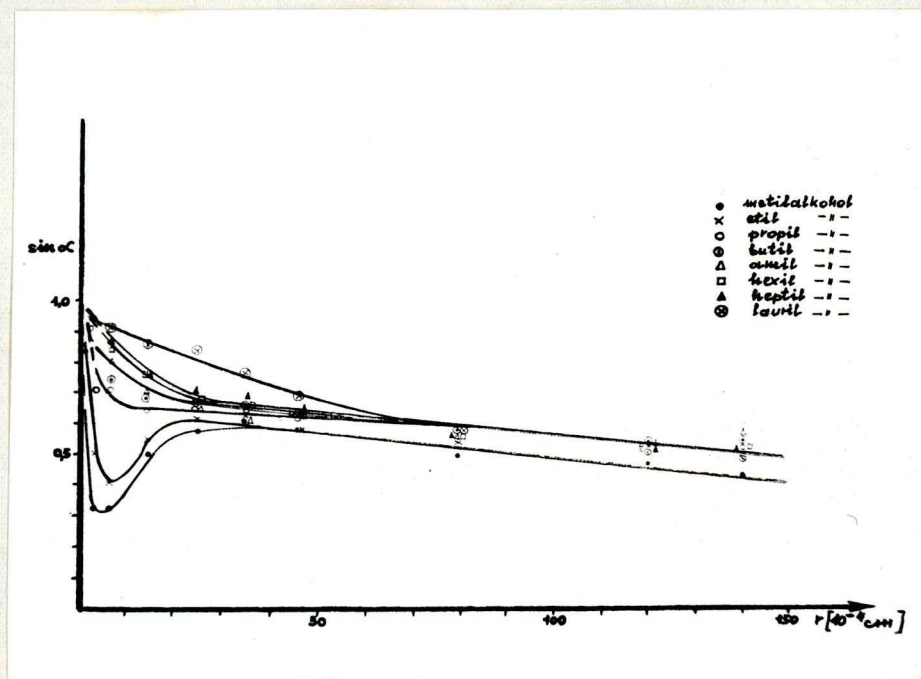
IX. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel lauril-
alkoholban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	67	0,9191
15	59	0,8554
25	57,4	0,8425
35	50	0,7660
50	43	0,6820
80	35	0,5736
120	30,1	0,5015
140	29,5	0,4924

2. ábra

A szakadási szög szinuszának változása a részecske-
mérettel alifás alkoholok homológ sorában



2./ Szakadási szög ketonok és karbonsavszármazékok

homolog sorában

A ketonokban és karbonsavszármazékokban a kvarc szakadási szöge a részecskeméret növekedésével minimum-maximum- vagy folytonosan csökkenő görbék szerint változik.

A X.-IV. táblázatok, valamint a 3,4. ábrák adataiból kitűnik, hogy a homolog sorok kis szénatomszámú tagjaiban - hasonlóan az alkoholokhoz - minimum-maximum görbe szerint változik a szakadási szög szinusza a részecskeméret növekedésével. A minimumok helye acetonban $15 \cdot 10^{-4}$ cm, metiletilketonban $7,50 \cdot 10^{-4}$ cm, metilacetátban $3,75 \cdot 10^{-4}$ cm, a tapadóképeség maximuma pedig acetonban $40 \cdot 10^{-4}$ cm, metiletilketonban $15 \cdot 10^{-4}$ cm, metilacetátban $10 \cdot 10^{-4}$ cm sugárméreteknél találhatók. A tapadóképeség maximumának elérése után a részecskeméret növekedésével a szakadási szög szinusza kismértékben csökken.

A magasabb szénatomszámú tagok folytonosan csökkenő görbék szerint befolyásolják a szakadási szög szinuszát a részecskeméret növekedésével. Hasonlóan a magasabb szénatomszámú alkoholok hatásához, a folytonosan csökkenő görbék két különböző meredekségű szakaszra oszthatók. Kis részecskeméreteknél a csökkenés nagymértékű, nagyobb részecskék esetén a görbe meredeksége csökken és határértékhez tart. Ez utóbbi szakaszban a $\sin \alpha$ értékei csak kismértékben változnak a diszperziós közeg minőségével.

X. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel acetonban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	42	0,6691
7,50	31	0,5150
15	14	0,2419
25	25	0,4226
35	33	0,5446
50	34	0,5592
80	30	0,5000
120	29	0,4848
140	27	0,4540

XI. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel dietilketon-
ban

Részecskesugár $r/10^{-4}$ cm/	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	41	0,6561
7,50	39,7	0,6388
15	35,5	0,5793
25	34,5	0,5650
35	33,8	0,5563
50	32,1	0,5314
80	24,1	0,4083
120	22,8	0,3875
140	21,3	0,3633

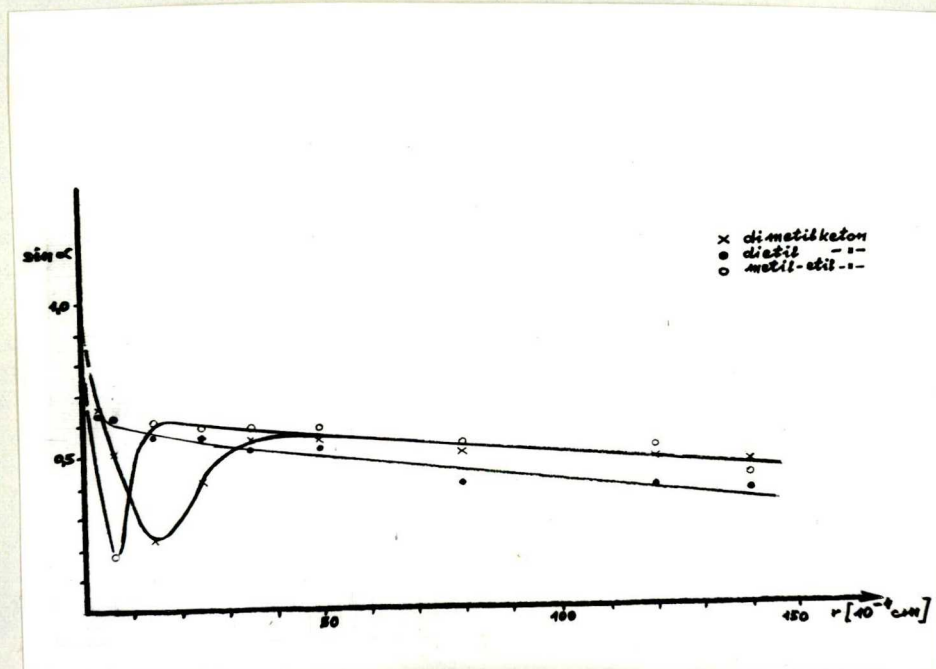
XII. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel metil-etil-
ketonban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	10	0,1736
15	37,5	0,6088
25	37	0,6018
35	36,5	0,5948
50	36,5	0,5948
80	32,5	0,5373
120	31,5	0,5225
140	29,5	0,4924

3. ábra

A szakadási szög szinuszának változása a részecske-
mérettel ketonok homológ sorában



XIII. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel metil-
acetátban

R észecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	15	0,2588
7,50	37	0,6018
15	36	0,5878
25	35	0,5736
35	35	0,5736
50	35	0,5736
80	32	0,5299
120	30	0,5000
140	28	0,4695

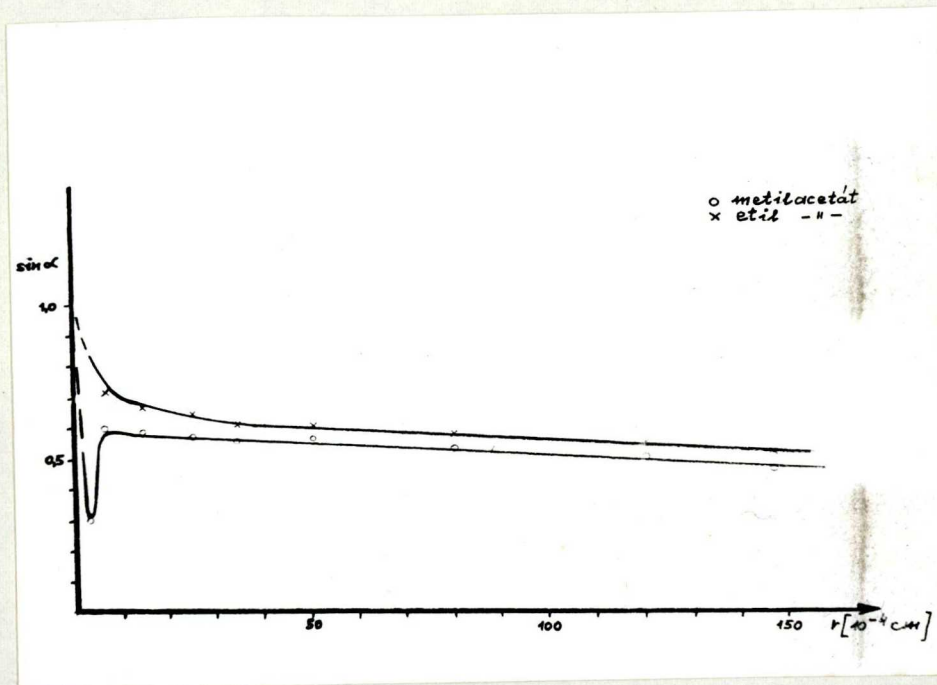
XIV. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel etil-
acetátban

Részecskesugár $r/10^{-4} \text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	62	0,8829
15	42	0,6691
25	41	0,6561
35	40	0,6428
50	38	0,6157
80	34	0,5592
120	33	0,5446
140	31	0,5150

4. ábra

A szakadási szög szinuszának változása a részecskemérettel
karbonsavszármazékokban



3./ Szakadási szög aromás folyadékokban

Aromás vegyületekben - benzolban és benzolszármazékokban - a kvarc szakadási szöge folytonosan csökkenő görbék szerint változik a részecskeméret növekedésével, kivételt képez a piridin, amelyben a szakadási szög minimumot és maximumot mutat. A kísérleti adatokat a XV.-XX. táblázat foglalja össze és az 5. ábrán vannak grafikusan ábrázolva.

Aromás folyadékokban a $\sin\alpha$ értékek közel azonosak. A vizsgált folyadékok közül legkisebb a kvarc tapadóképesége benzolban legnagyobb pedig nitrobenzolban és klórbenzolban.

Az eredmények azt mutatják, hogy piridinben $7,5 \cdot 10^{-4}$ cm részecskeméretig meredeken csökken a $\sin\alpha$ értéke, majd növekszik és lapos maximum elérése után ismét csökken.

XV. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel benzolban

Részecskesugár $r/10^{-4} \text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	> 75	> 0,96
15	46	0,7193
25	42	0,6691
35	40	0,6428
50	37	0,6018
80	31	0,5150
120	29	0,4848
140	26	0,4384

XVI. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel xilolban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	$> 0,96$
7,50	68	0,9272
15	57	0,8387
25	45	0,7071
35	40	0,6428
50	36	0,5878
80	30	0,5000
120	26	0,4384
140	24	0,4067

XVII. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel toluolban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{ cm/}$	Szakadási szög	
	$\angle^{\circ}$	$\sin \angle$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	> 75	> 0,96
15	53	0,7986
25	44	0,6947
35	41	0,6561
50	39	0,6293
80	34	0,5592
120	31	0,5150
140	29	0,4848

XVIII. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel nitro-
benzolban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	$> 0,96$
7,50	> 75	$> 0,96$
15	53	0,7986
25	48	0,7431
35	45	0,7071
50	42	0,6691
80	36	0,5878
120	34	0,5592
140	34	0,5592

XIX. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel klór-
benzolban

Részecskesugár $r/10^{-4} \text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	> 75	> 0,96
15	> 75	> 0,96
25	48	0,7431
35	44	0,6947
50	41	0,6561
80	36	0,5878
120	34	0,5592
140	31	0,5150

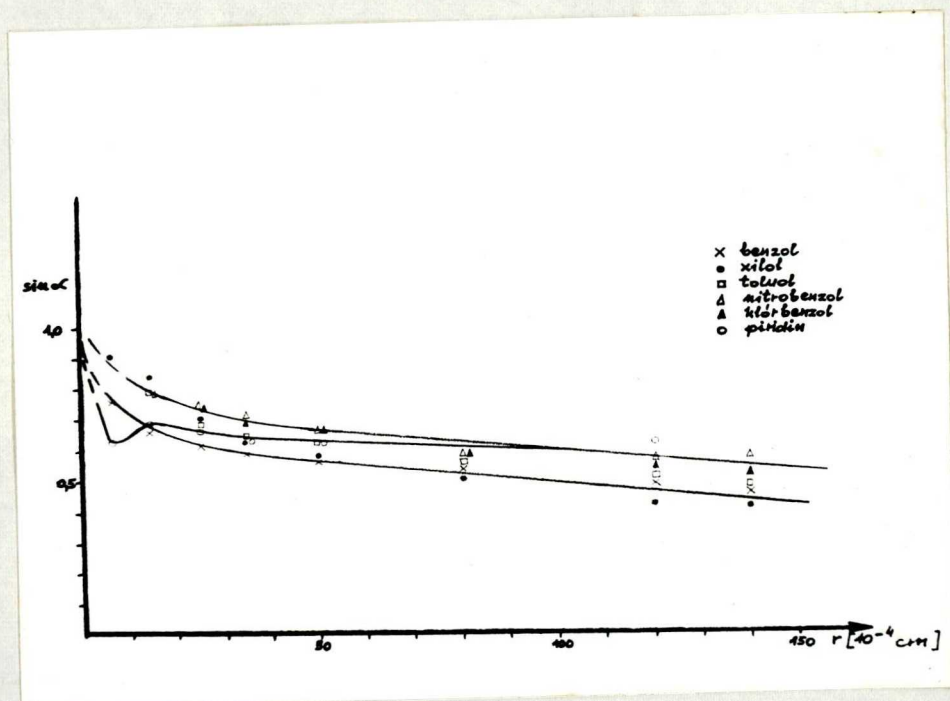
XX. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel piridinben

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	40	0,6428
15	43	0,6820
25	42	0,6691
35	40	0,6428
50	39	0,6293
80	-	-
120	38	0,6157
140	-	-

5. ábra

A szakadási szög szinuszának változása a részecskemérettel
aromás folyadékokban



4./ Szakadási szög néhány különböző molekulaszervezetű
szerves folyadékokban

Ha a diszperziós közeg n-hexan, ciklohexan, ciklohexanon, ciklohexanol, etiléter, kloroform vagy széntetrazoklorid, a tapadóképeség a folyadékok anyagi minőségétől függetlenül csökkenő görbék szerint változik a részecskeméret növekedésével. A mérési eredményeket a XXI.-XXVII. táblázatokban és 6.-9. ábrákon foglaltam össze.

Kis részecskénél a szakadási szög szinusza meredeken csökken a részecskeméret növekedésével és a görbék meredeksége általában annál nagyobb, minél kisebb a diszperziós közeg polaritása. A részecskeméret növekedésével a görbék közelednek egymáshoz, s majdnem párhuzamosan futnak a különböző diszperziós közegekben.

XXI. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel n-hexanban

Részecskesugár $r/10^{-4} \text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	52	0,7880
7,50	51	0,7771
15	49	0,7547
25	46	0,7193
35	45	0,7071
50	43	0,6820
80	35	0,5736
120	34	0,5592
140	32	0,5299



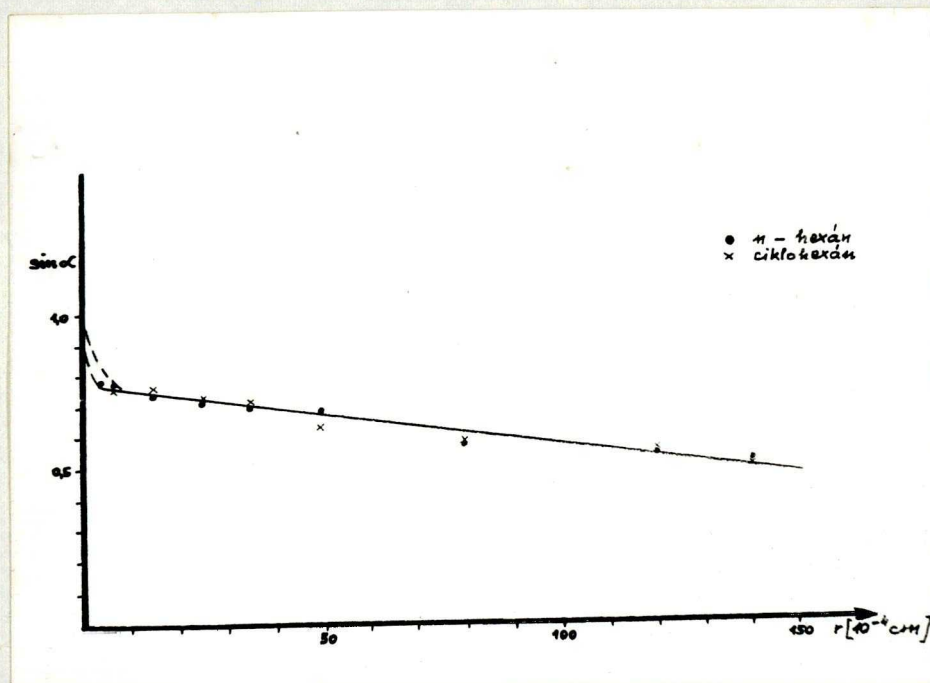
XXII. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel ciklohexánban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	$> 0,96$
7,50	47	0,7290
15	50	0,7672
25	54	0,8100
35	45,5	0,7133
50	40,5	0,6494
80	35,7	0,5835
120	34,5	0,5664
140	32	0,5313

6. ábra

A szakadási szög szinuszának változása a részecskemérettel
n-hexanban és ciklohexanban



XXIII. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel ciklo-
hexanolban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	$> 0,96$
7,50	58,5	0,8526
15	55,5	0,8241
25	49,5	0,7604
35	42,	0,6691
50	42	0,6691
80	35	0,5736
120	34	0,5315
140	35,5	0,5807

XXIV. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel ciklo-
hexanonban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	58	0,8480
7,50	55	0,8192
15	43	0,6820
25	40	0,6428
35	39	0,6293
50	37	0,6018
80	35	0,5736
120	33	0,5446
140	32,5	0,5373

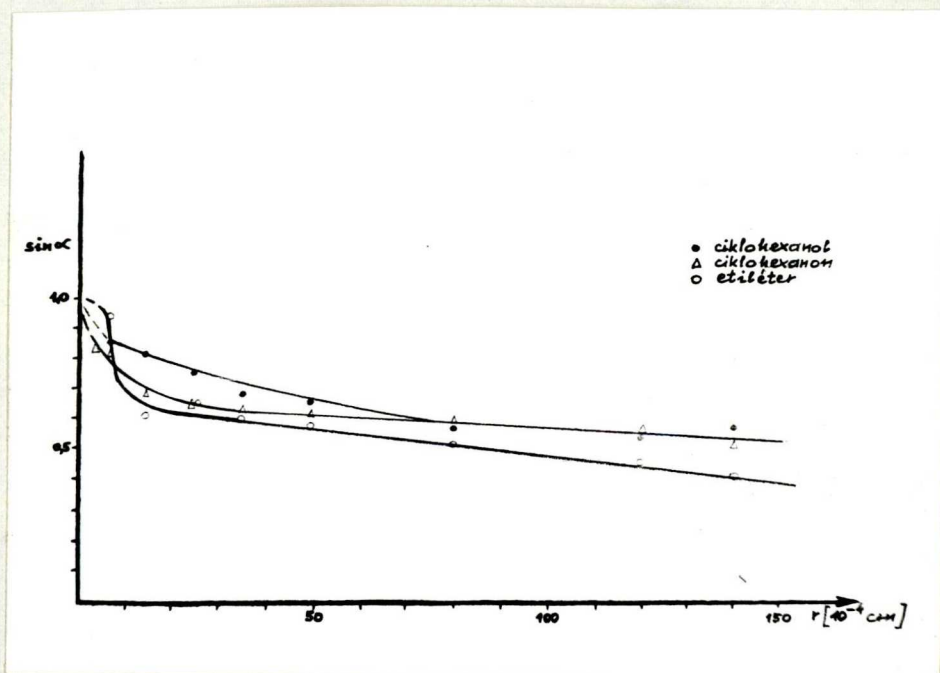
XXV. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel etiléterben

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	75	0,9659
15	39	0,6293
25	41	0,6561
35	38	0,6157
50	37	0,6018
80	31	0,5150
120	29	0,4848
140	25	0,4226

7. ábra

A szakadási szög szinuszának változása a részecskemérettel
ciklohexanol-, ciklohexanon és
etiléterben



XXVI. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel kloroformban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	58	0,8480
15	43	0,6820
25	37	0,6018
35	37	0,6018
50	35	0,5736
80	33	0,5446
120	30	0,5000
140	27	0,4540

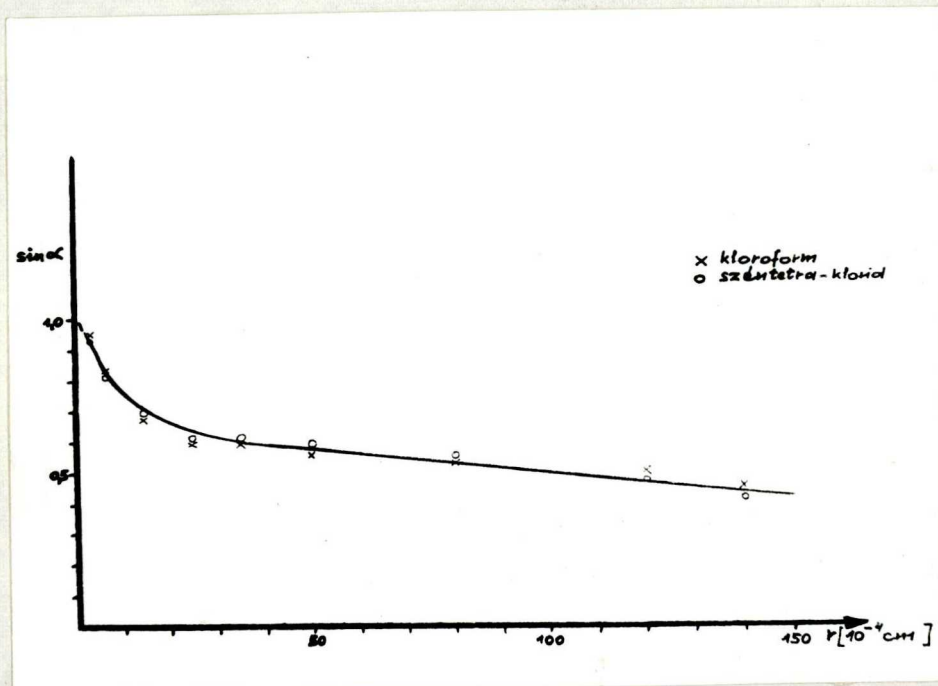
XXVII. táblázat

Szakadási szög változása a részecskemérettel széntetra-
kloridban

Részecskesugár $r/10^{-4}\text{ cm/}$	Szakadási szög	
	α°	$\sin \alpha$
3,75	> 75	> 0,96
7,50	70	0,9397
15	44	0,6947
25	38	0,6157
35	38	0,6157
50	37	0,6018
80	34	0,5592
120	30	0,5000
140	29	0,4848

8. ábra

A szakadász szög szinuszának változása a részecskemérettel
kloroformban és széntetrakloridban



5./ Szakadási szög desztillált vízben

Desztillált vízben a kvarc szakadási szögének szinusa minimum-maximum-görbe szerint változik a részecskeméret növekedésével. A mérési eredményeket a XXVIII. táblázat és a 9. ábra mutatja. A tapadóképesség minimuma $15 \cdot 10^{-4}$ cm, maximuma pedig $25 \cdot 10^{-4}$ cm sugárméreteknél található, s a részecskeméret további növekedésével a tapadóerő kismértékben csökken.

Desztillált vízben érdekes változás tapasztalható: a szakadási szög nagymértékben függ a részecskék alaplappal való érintkezésének idejétől az un. kontakt időtől. Ez a változás kifejezettebb a kisebb részecskeméreteknél: a $7,5 \cdot 10^{-4}$ és $15 \cdot 10^{-4}$ cm sugarú részecskék 2 órás kontakt idő után mért szakadási szög-értékei jóval nagyobbak mint a 10 perces ülepitési idő után mért értékek. Egy napos kontakt idő után a szakadási szög időfüggése már a nagyobb részecskeméreteknél is tapasztalható.

A kontakt idő további növelésével a minimum-maximum-görbe egyre inkább ellaposodva a magasabb $\sin \alpha$ értékek felé tolódik el és 3 napos kontakt idő után a korábbi minimum-maximum-görbe helyett folytonosan csökkenő görbe szerint változik a tapadóképesség.

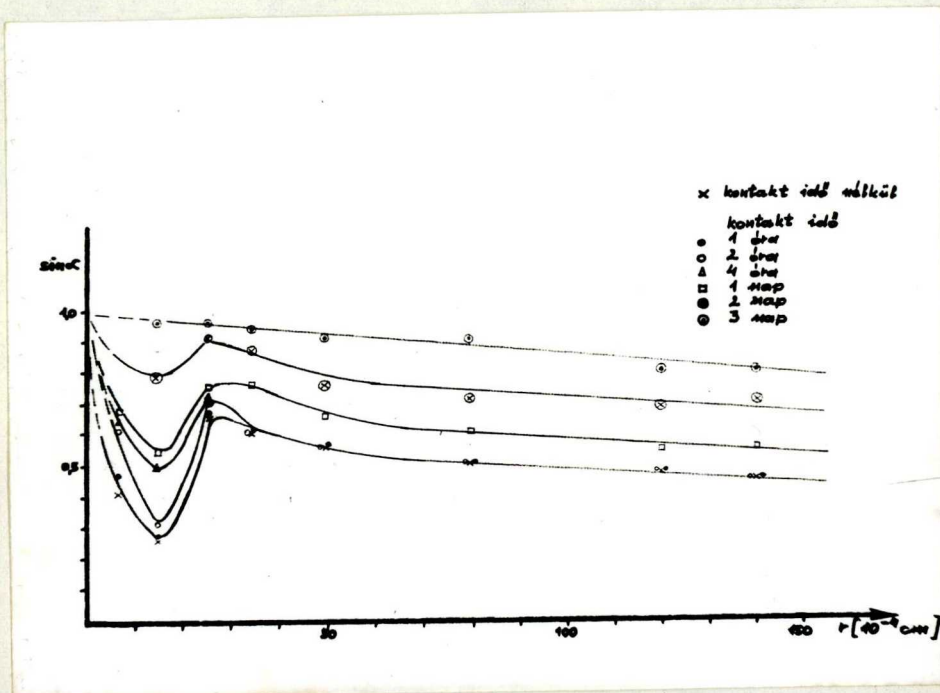
XXVIII. táblázat

Különböző méretű részecskék szakadási szögének változása vízben a kontakt idővel

Részecskesugár $r/10^{-4} \text{ cm/}$		Kontakt idő						
		10 perc	1 óra	2 óra	4 óra	1 nap	2 nap	3 nap
3,75	α^0 $\sin \alpha$	> 75 > 0,96	> 75 > 0,96	> 75 > 0,96	> 75 > 0,96	> 75 > 0,96	> 75 > 0,96	> 75 > 0,96
7,50	"	24 0,4067	29 0,4848	37 0,6018	40 0,6428	42 0,6691	> 75 > 0,96	> 75 > 0,96
15	"	15 0,2588	15 0,2588	19 0,3256	30 0,5000	33 0,5446	52 0,7880	> 75 > 0,96
25	"	41 0,6561	42 0,6691	45 0,7071	- -	48 0,7431	65 0,9063	> 75 > 0,96
35	"	38 0,6157	- -	38 0,6157	- -	50 0,7660	60 0,8660	70 0,9397
50	"	34 0,5592	- -	34 0,5592	- -	42 0,6691	50 0,7660	70 0,9397
80	"	31 0,5150	- -	31 0,5150	- -	38 0,6157	45 0,7071	65 0,9063
120	"	29 0,4848	- -	29 0,4848	- -	33 0,5446	44 0,6947	55 0,8192
140	"	28 0,4695	- -	28 0,4695	- -	35 0,5736	45 0,7071	55 0,8192

9. ábra

Különböző méretű részecskék szakadási szögének válto-
zása vízben a kontakt idővel



IV. A KISÉRLETI EREDMÉNYEK ÉRTÉKELESE

A kísérleti eredmények értékelésénél körültekintően figyelembe kell venni a diszperz rész és a diszperziós közeg tulajdonságait, a közöttük lehetséges kölcsönhatásokat, a szilárd felületeken kialakuló adszorpciós rétegek szerkezetét és különböző mérvű deformálódását, hogy értékelhessük az adhézió részecskemérettel való változását.

Az irodalmi áttekintésből is kitűnik, hogy a tapadóképeség a tapadó felületek anyagi minőségétől és a kísérleti körülményektől függ. Az adhéziót befolyásolja a tapadó-részecskék mérete, alakja, a részecskék struktúrája és a felületi sajátságok. Figyelembe kell venni a diszperziós közeg molekuláinak méreteit, alakját, szerkezeti felépítését, poláris sajátságait, valamint térbeli elrendeződését.

A kísérleti eredményekből megállapítható, hogy az általam vizsgált különböző molekulaszervezetű szerves folyadékokat két nagy csoportra oszthatjuk:

1/ A szerves folyadékok egyik csoportjába a kvarc-részecskék tapadóképesége növekvő részecskemérettel folytonosan csökkenő görbe szerint változik. Ez tapasztalható különböző molekulaszervezetű apoláris vegyületekben, aromás folyadékokban valamint a magasabb szénatomszámú alkoholokban.
/2,3,4,5. ábra/.

Buzágh /19,21/ szerint a fenti folyadékokban tapasztalt nagy adhézió azzal magyarázható, hogy a folyadékok molekuláiból viszonylag vékony, tömör, kis súlyu részecskékkel nem deformálható lioszférák alakulnak ki a poláris kvarc felületén. A részecskeméret növekedésével a tapadóképeség csökken, a részecskék már kis dőlési szögnél leszakadnak a felületről, mert az adhéziót legyőzi a részecskék súlya.

Ezekben a szerves folyadékokban a tapadóképeség annál nagyobb, minél nagyobb a részecskék görbületi sugara. A $\sin \alpha = f/\frac{1}{r}$ függvények adszorpciós izotermákra emlékeztető görbéket határoznak meg, amint ezt a XXIX. táblázat és 10,11,12,13. ábrák mutatják néhány diszperziós közeg esetében. Ilyen alakú görbék általában leírhatók egy hatványfüggvénnyel, amelyben az adszorpciós kötevő analógiájára un. adhéziós kötevő szerepelhet, azaz

$$\sin \alpha = k \left[\frac{1}{r} \right]^n$$

ahol k és n az adott rendszerre jellemző konstansok, amelyek a diszperz rész és a diszperziós közeg sajátosságait foglalják magukba, valamint a fellépő kölcsönhatásokból származó tényezőket. A szakadási szögek szinuszainak logaritmusa és az $\frac{1}{r}$ logaritmusa között lineáris összefüggés van /14. ábra/. Az egyenesek meredeksége a különböző molekulaszervezetű és polaritású folyadékokban közel azonos.

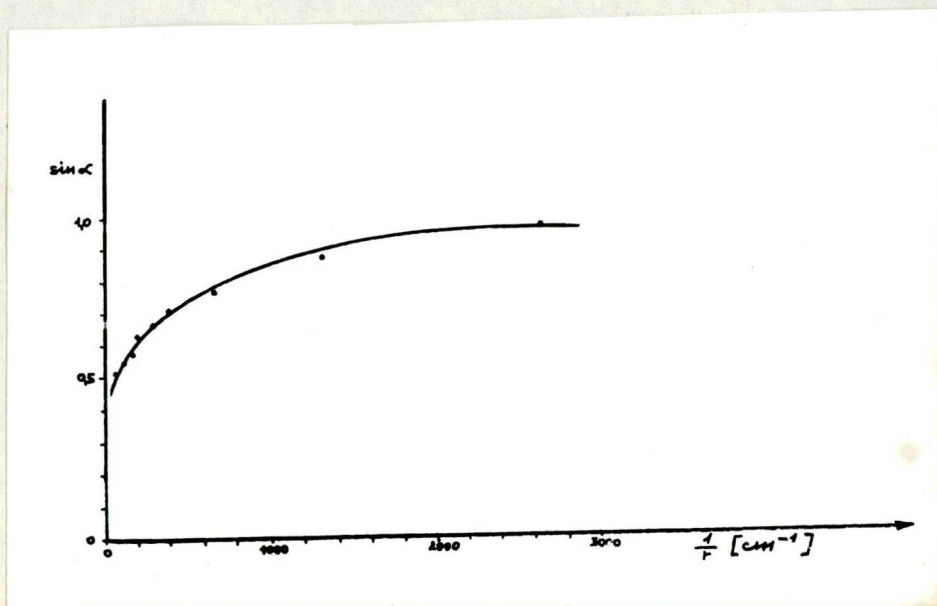
XXIX. táblázat

A szakadási szögnek és a részecskék sugara reciprokának logaritmus értékei

$\frac{1}{r} / \frac{1}{\text{cm}} /$	$\log / \frac{1}{r} /$	heptilalkohol $\log \sin \alpha$	diethylketon $\log \sin \alpha$	kloroform $\log \sin \alpha$	toluol $\log \sin \alpha$
2660	3,4249	> 9,98-10	9,8169-10	> 9,98-10	> 9,98-10
1330	3,1239	9,9349-10	9,8081-10	9,9284-10	> 9,98-10
668	2,8248	9,8843-10	9,7692-10	9,8338-10	9,9023-10
400	2,6021	9,8502-10	9,7586-10	9,7795-10	9,8481-10
285	2,4548	9,8772-10	9,7476-10	9,7795-10	9,8169-10
200	2,3010	9,8026-10	9,7242-10	9,7586-10	9,7989-10
125	2,0969	9,7618-10	9,6093-10	9,7242-10	9,7476-10
83,1	1,9196	9,7476-10	9,5919-10	9,6990-10	9,7118-10
71,1	1,8519	9,7242-10	9,5602-10	9,6570-10	9,6856-10

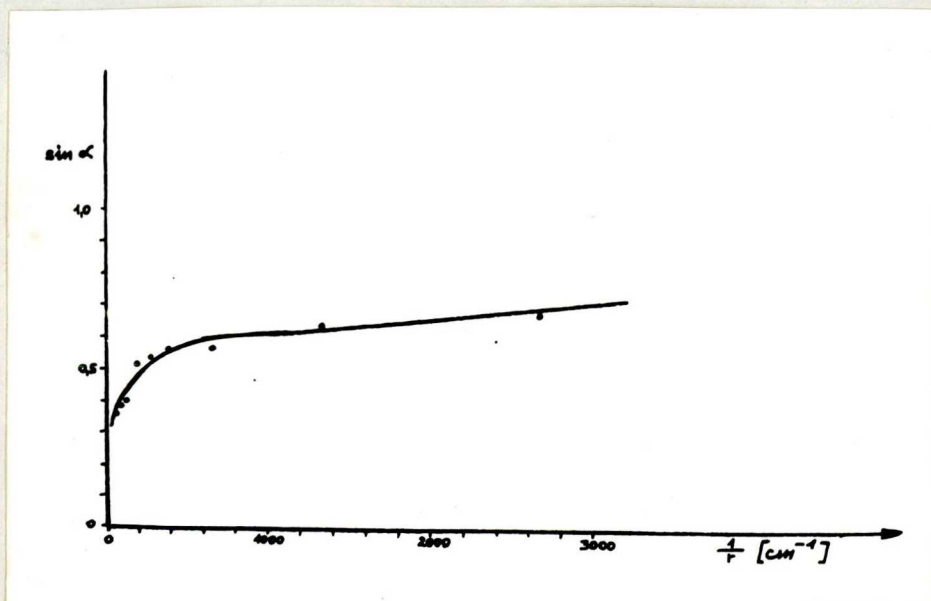
10. ábra

A szakadási szög változása $\frac{1}{r}$ függvényében heptilalkoholban



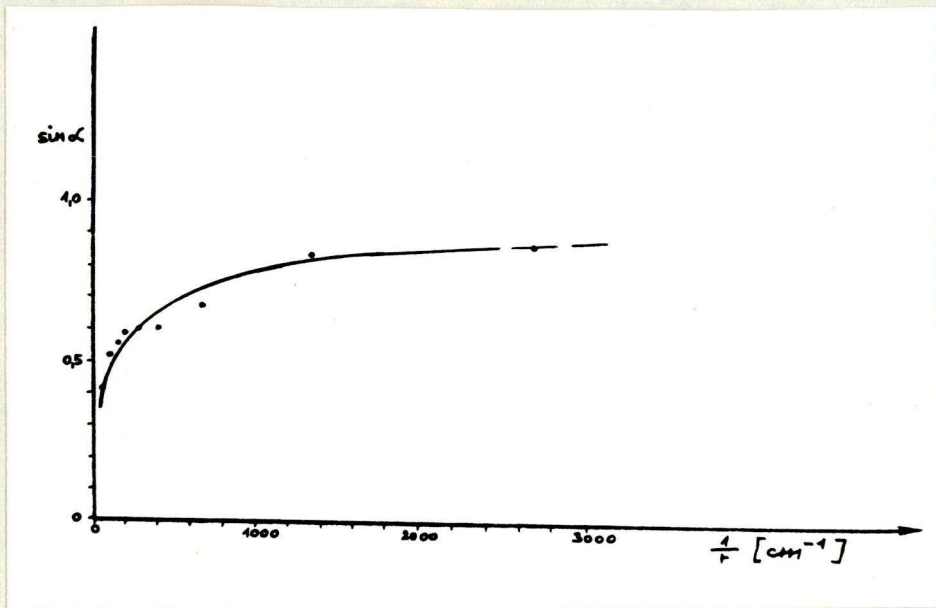
11. ábra

A szakadási szög változása $\frac{1}{r}$ függvényében dietilketonban



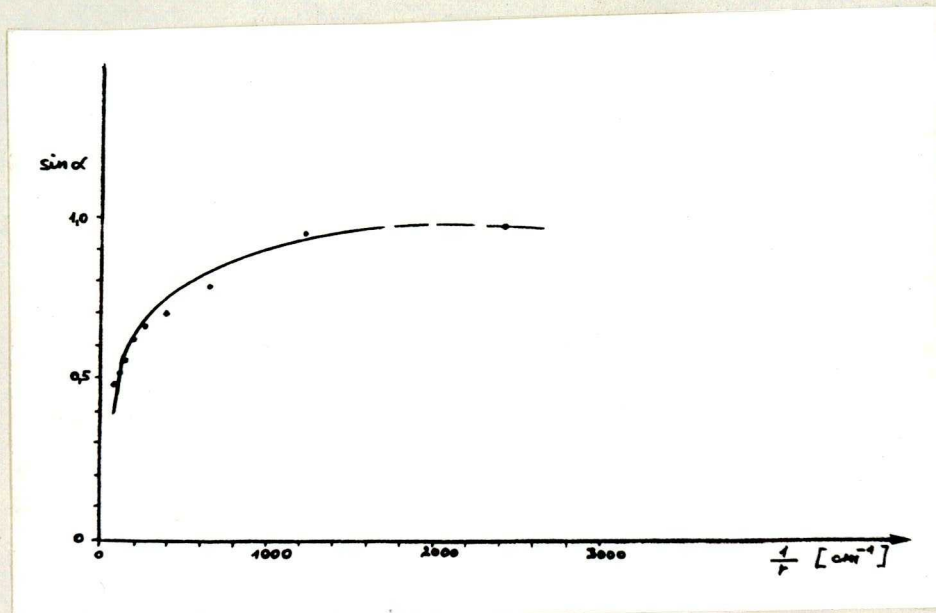
12. ábra

A szakadási szög változása $\frac{1}{r}$ függvényében kloroformban



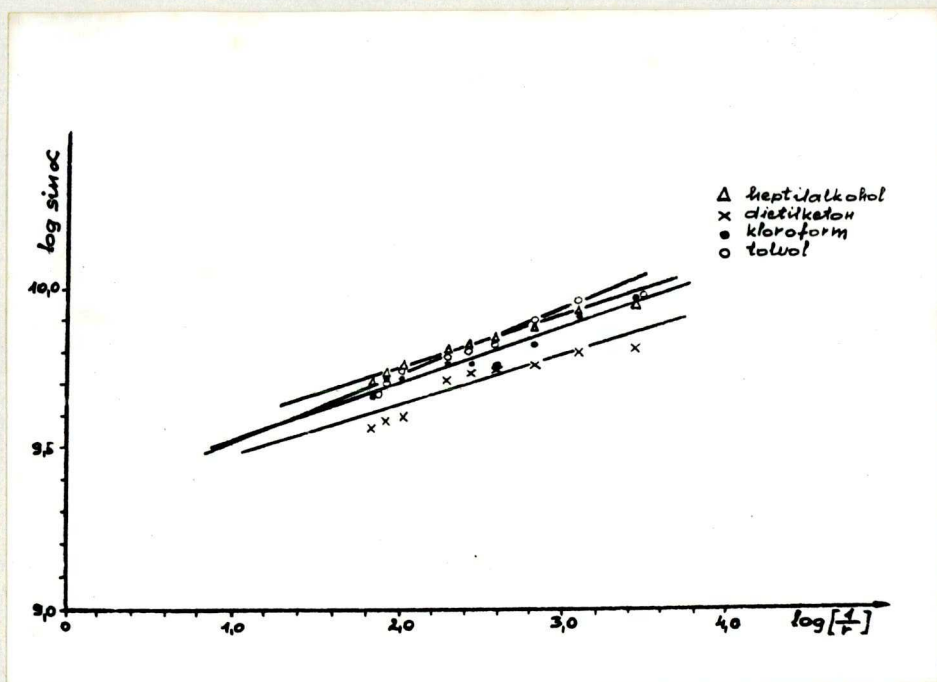
13. ábra

A szakadási szög változása $\frac{1}{r}$ függvényében toluolban



14. ábra

A szakadási szög logaritmusának $\frac{1}{2}$ logaritmusával való változása különböző molekulaszervezetű folyadékokban



Bár az adhézió felületek kölcsönhatása, folyékony közegben a felületen kialakuló adszorpciós réteg játszik döntő szerepet. Ennek figyelembevétele a többi tényezővel együtt /részecskékre és közegre vonatkozó sajátságok, a felületegységen tapadó pontok alaplaptól való távolsága/ rendkívül bonyolult feladat, ezért nem lehetséges egyszerű összefüggés kidolgozása az adhézióra.

Több kutató felállított ugyan kvantitatív összefüggést az adhézió nagyságának meghatározására, ezek azonban nem helytállóak:

a/ Hamaker, Verwey és Overbeek által elméleti megfontolások alapján számított adhéziós potenciálfüggvények mutatják, hogy az adhézió jelensége nagyon összetett. A fajlagos adhézió kiszámítása tehát lényegesen bonyolultabb annál, semhogy egyszerű összefüggéssel értékelhető lenne.

b/ A folyadék sűrűségének befolyása is csak a fajlagos adhézió számított eredményeiben jelentkezik, holott a kísérleti eredmények ezt nem támasztják alá.

c/ A fajlagos adhézió értéke is függ a részecskeméret-től.

Kitűnik tehát, hogy folyékony közegben a részecskék és az alaplap közötti tapadóképeességet a szakadási szög nagyságával jellemezhetjük.

Az eredményeket összegezve megállapítható, hogy a tapadóképeesség részecskemérettel való változását viszonylag egyszerű hatványfüggvény írja le, az összefüggésben szereplő konstansok számértékei azonban sok tényezőt foglalnak magukba. Feltételezhetően legnagyobb befolyással az adszorpciós réteg szerkezete és deformálhatósága bír.

2/ A folyadékok másik csoportjában a szakadási szög szinusza minimum-maximum-görbe szerint változik a részecskemérettel. Ez tapasztalható a kis szénatomszámú alkoholokban, ketonokban, metilacetátban és vízben.

A II, III, X, XII, XIII, XX, XXVIII. táblázatok és 2,3,4,5,9. ábrák világosan mutatják, hogy ezen folyadékokban rendkívül bonyolultan változik a kisebb részecskeméret inter-

vallumban a tapadóképeség.

A kísérleti eredményeket Buzágh /4,19/ szerint a következőképpen magyarázhatjuk: poláris folyadékokban és vízben a poláris kvarc felületén vastag, diffúz, könnyen deformálható lioszférák alakulnak ki. Ha a részecskék kicsik $/r = 1 \cdot 10^{-4} \text{ cm}/$, kis súlyuk miatt a lioszférákat nem, vagy csak igen csekély mértékben deformálják. A kvarcrészecskék mintegy "folyadékfilmen" csusznak le, a részecskesúly növekedésével tehát a szakadási szög a minimumnak megfelelő méret-határokig csökken. Növelve a részecskék méretét kb. $r = 30 \cdot 10^{-4} \text{ cm}$ -ig a lioszféra mind jobban deformálódik, a felületek közelebb jutnak egymáshoz és a szakadási szög egy maximumig növekszik. Ezután ismét kismértékben csökken az adhézió a részecskeméret növekedésével, mivel az adhéziót legyőzi a részecskék súlya.

Kisméretű részecskék esetén a függvény bonyolult lefutása miatt egyszerű összefüggés nem várható, a nagyobb részecskeméretekre viszont alkalmazható az előző folyadék csoportra érvényes összefüggés. Ez mintegy bizonyíték arra, hogy a különböző polaritású folyadékokban a szilárd felületeken kialakult adszorpciós réteg szerkezetében, vastagságában és deformálhatóságában - minden kétséget kizáróan - csak kisméretű részecskék esetén van számottevő különbség. Alifás alkoholokban a $25 \cdot 10^{-4} \text{ cm}$ -nél kisebb részecskék tapadóképesége annál nagyobb, minél nagyobb az alkohol szénatomszáma, amely viszont a polaritás változásával párhuzamos.

Ugyanakkor ezt a hatást nagyobb méretű részecskéknél már nem lehet teljes biztonsággal kimutatni. A különböző molekulaszervezetű folyadékokban is csak a kisméretű részecskék tapadóképesége változik, mégpedig a folyadékok polaritásának csökkenésével egyre nagyobb az adhézió.

Általánosságban megállapítható tehát, hogy a polaritás növekedésével a tapadóképeség csökken.

Ezt támasztja alá a következő tény is: az adhézió a részecskemérettel csak olyan esetekben változik minimum-maximum-görbe szerint, ha a diszperziós közeg minden arányban, de legalább is részlegesen elegyedik vízzel, mint ez a XXX. táblázat adataiból megállapítható. Vízzel nem elegyedő szerves folyadékokban minden esetben csökkenő görbék szerint változik a kvarc tapadóképesége. Ez a tény arra mutat, hogy nemcsak a folyadékmolekulák poláris sajátságait kell figyelembe venni.

A részecskék felületén adszorbeálódott vízmolekulák is lényeges befolyással lehetnek a tapadóképeségre. Mint ismeretes, a vízmolekuláknak a szerves folyadék molekulákkal történő kölcsönhatása következtében megváltozik a tiszta folyadék amikroszkópos szerkezete. Ez ad magyarázatot valószínűleg pl. a nitrobenzol és a klórbenzol eltérő viselkedésére is. A vártnál nagyobb tapadóképeség ezekben a folyadékokban a víz hatására bekövetkező asszociálódásra vezethető vissza.

Szerves folyadékok oldhatósága vízben

Szerves folyadék	100 tf.r.vízben oldódó tf.r. 20-25 C°-on
metilalkohol	∞
etilalkohol	∞
propilalkohol	∞
aceton	∞
piridin	∞
metiletilketon	35
metilacetát	31
etilacetát	8,5
butilalkohol	7,9
etiléter	7,5
ciklohexanol	5,6
dietilketon	4,7
amilalkohol	2,7
ciklohexanon	2,4
kloroform	0,82
széntetraklorid	0,77
hexilalkohol	0,7
toluol	0,62
xilol	0,19
benzol	0,17
nitrobenzol	0,19
n-hexan	0,011
heptilalkohol	0,1
klórbenzol	0,048
ciklohexan	0,01
laurilalkohol	0,0

Buzágh /2/ valamint Krupp és munkatársai /36,37/ megállapították, hogy a tapadóképesség folyékony közegű rendszereknel növekszik az ún. kontakt idővel. Ez a jelenség valószínűleg a szilárd felületek között kialakuló vékony folyadékfilmek időtől függő elvékonyodásával függ össze.

A kvarcrészecskék vízben mért tapadóképességének /9. ábra/ a kontakt idővel való növekedését tehát a következő módon értelmezhetjük: kis sulyú részecskék esetében is lehetséges a lioszférák deformációja, de ez a folyamat mérhető időn belül meg is végbe. $15 \cdot 10^{-4}$ cm sugarú részecskék mutatják a legnagyobb időfüggést, ezen részecskék tapadóképessége növekszik meg legnagyobb mértékben a kontakt idővel. Tíz perces ülepitési idő után mért szakadási szög kicsi, hiszen nincs idő arra, hogy a lioszféra deformálódjon, így a részecske lecsuszlik a folyadékfilmen. A kontakt idő növelésével azonban a lioszféra nagymérvű deformációja miatt a részecskék és az alaplap közötti távolság csökken, ami az adhézió növekedését vonja magaután. Nagyobb részecskék esetén az effektus kisebb, valószínűleg azért, mert a lioszférák deformációja már kezdetben is nagy, további deformációra kevesebb a lehetőség, így a tapadóképesség növekedése a kontakt idővel kisebb mértékű.

Ez a jelenség minden esetre azt bizonyítja, hogy a diszperziós közegből kialakult lioszféra deformálhatósága egyike a legfontosabb mérvadó tényezőknek a tapadóképesség szempontjából.

Összefoglalva megállapítható, hogy az adhézió részecskemérettel való változásáért döntően a szilárd felületeken kialakuló lioszférák szerkezete, vastagsága és deformálhatósága felelős, ezt pedig a diszperziós közeg molekuláinak polaritása ill. molekulaszervezete, a nedvesedőképesség és a vizoldékonyság befolyásolja legnagyobb mértékben.

ÖSSZEFOGLALÁS

1./ Kísérleteim során megvizsgáltam, hogyan változik a részecskemérettel a homodiszperz kvarc frakciók szakadási szöge vízben és különböző molekulaszervezetű illetve polaritású szerves folyadékokban.

2./ Megállapítottam, hogy a szakadási szög diszperzitásfoktól való függése az általam vizsgált folyadékokban kétféle görbetípus szerint változik:

a/ az egyik csoportba tartoznak azok a folyadékok, amelyben a szakadási szög értékei növekvő részecskemérettel folytonosan csökkenő görbe szerint változik,

b/ a tiszta /egykomponensű/ folyadékok másik csoportjában a szakadási szög szinusza minimum-maximum-görbe szerint változik a részecskeméret növekedésével.

3./ Kimutattam, hogy a tapadókéesség csak akkor változik minimum-maximum-görbe szerint, ha a diszperziós közeg minden arányban, de legalábbis részlegesen elegyedik vízzel.

4./ Kimutattam, hogy a folyadékok a/ csoportjában a $\sin \alpha = f/\frac{1}{r}$ függvények adszorpciós izotermákra emlékeztető görbéket határoznak meg, amelyek viszonylag egyszerű hatványfüggvénnyel leírhatók:

$$\sin \alpha = k \left[\frac{1}{r} \right]^n$$

A b/ csoportba tartozó folyadékokra viszont a diszperzítási fok függvény bonyolult lefutása miatt egyszerű összefüggés nem várható.

5./ Megállapítottam, hogy a fajlagos adhézió nagyságának kiszámítása egyszerű összefüggéssel nem valósítható meg, mert az adhéziót befolyásoló tényezők együttes figyelembevétele rendkívül bonyolult feladat. Ezért a tapadóképesség jellemzésére a $\sin \alpha$ értékét adhatjuk meg.

6./ A kvarcrészecskék vízben mért tapadóképessége nagymértékben változik a kontakt idővel. A jelenség valószínűleg a szilárd felületek között kialakuló vékony folyadékfilmek időtől függő elvékonyodásával magyarázható.

7./ A kísérleti eredményekből kitűnik, hogy csak a kisméretű részecskék tapadóképessége változik a diszperziós közeg minőségével.

8./ Összefoglalva megállapítottam, hogy a folyadékban mért tapadóképesség diszperzitásfoktól való függését elsősorban a szilárd felületeken kialakuló lioszférák szerkezete, vastagsága, különböző mérvű deformálódása determinálja.

IRODALOMJEGYZÉK

- 1./ Buzágh, A.: Kolloid-Z. 47, 370 /1929/
- 2./ - " - - " - 51, 105 /1930/
- 3./ - " - - " - 51, 230 /1930/
- 4./ - " - - " - 52, 46 /1930/
- 5./ - " - - " - 53, 294 /1930/
- 6./ - " - : Kolloidchem. Beihefte 32, 114 /1930/
- 7./ Derjagin, B.V. - W. Lasarew: Kolloidnűj Zs. 1, 295 /1935/
- 8./ Buzágh, A.: Kolloid-Z. 76, 2 /1936/
- 9./ - " - - " - 79, 156 /1937/
- 10./ Buzágh, A. - Z. Szabó: Kolloid-Z. 83, 139 /1938/
- 11./ Buzágh, A. - K. Dux: - " - 83, 3 /1938/
- 12./ Buzágh, A. - I. Zimmermann: - " - 84, 16 /1938/
- 13./ Buzágh, A.: Kolloid-Z. 85, 318 /1938/
- 14./ Buzágh, A. - E. Erényi: Kolloid-Z. 91, 191 /1940/
- 15./ - " - - " - : Matematikai és Természettudományi
Értesítő 58 /1939/
- 16./ - " - - " - : Kolloid-Z. 91, 279 /1940/
- 17./ - " - : Matematikai és Természettudományi Értesítő
61, 89 /1942/
- 18./ - " - : Acta Chimica 1, 182 /1951/
- 19./ - " . : Kolloidika I., II/2. Akad. Kiadó Budapest, 1951.
- 20./ Buzágh, A. - F. Szántó: Kolloid-Z. 141, 1 /1955/
- 21./ Buzágh, A.: Annales Univ. R. Eötvös Sect. Chimica 1, 32 /1959/
- 22./ Palmer, R.C. - E.K. Rideal: J. Chem. Soc. 1, 573 /1939/
- 23./ Cremer, E. - Th. Kraus - F. Konrad: Angev. Chem. 64, 10 /1952/
- 24./ Batel, W.: Chemie Ing. Techn. 31, 343 /1959/

- 25./ Patat, F. - W.Schmid: Chemie Ing. Techn. 32, 8 /1960/
26./ Derjagin, B.V. - A.D.Zimon: Kolloidnűj Zs. 23, 544 /1961/
27./ Zimon, A.D.: Kolloidnűj Zs. 25, 317 /1963/
28./ Deryagin, B.V. - T.N. Voropayeva - B.N.Kabanov -
A.S.Titijevskaia: J.Coll.Sci. 19, 113 /1964/
29./ Fuks, G.I.: Kolloidnűj Zs. 20, 748 /1958/
30./ Kőrösné Fraknű V. - Szabó J.: HIKI Közlemények VI.évf.
2.szám 1966. /Előadásként hangzott el az
1964 szept.6-12 között Brüsszelben rendezett Felületaktív Kongresszuson./
31./ Kőrösné Fraknű V. - Szabó J. HIKI Közlemények VI.évf.
1 szám 1966. /Előadásként hangzott el az
1965 július 12-18. között Moszkvában rendezett XX.IUPAC Kongresszuson./
32./ Lifshitz, E.M.: Soviet Phys., JETP, 2, 73 /1956/
33./ Böhme, G. - W.Kling - H.Krupp - H.Lange - G.Sandstede -
G.Walter: Z.Angew.Phys. 19, 265 /1965/
34./ Böhme, G. - H.Krupp - G.Sandstede - G.Walter - W.Kling -
H.Lange: IV.Intern.Congr.Surface Activity,
Brussels, 1964, preprints.
35./ Böhme, G. - Z.Egey - H.Krupp: IV.Intern.Congr. Surface
Activity, Brussels, 1964, preprints.
36./ Böhme, G. - W.Kling - H.Krupp - H.Lange - G.Sandstede -
G.Walter: IV.Intern.Congr. Surface Activity
Brussels, 1964, preprints.
37./ Krupp, H.: Advan.Colloid Interface Sci., 1, 111 /1967/

