

KIRÓL NEVEZTÉK EL?

Inzelt György

■ ELTE Fizikai Kémiai Tanszék

A BET-egyenlet

A Brunauer–Emmett–Teller-féle egyenlet, a BET-egyenlet gázok fizikai adszorpcióját írja le szilárd felületeken. (Tehát amikor a gáz nem lép kémiai kölcsönhatásba a felület anyagával: nem történik kemisorpció.) Ma leginkább a felületek nagyságának meghatározására használjuk különböző bonyolult szerkezetű (így például pórusos) anyagok esetén. Az, hogy a fajlagos felület mekkorának adódik, függ a használt gáztól. Ez érthető, mert például a legkisebb méretű pórusokba csak a hidrogénmolekula fér be, míg a gyakorta használt nitrogén vagy argon nem [1, 2]. A háromszerzős cikk 1938-ban jelent meg [Stephen Brunauer, Paul Hugh Emmett, Edward Teller, Adsorption of Gases in Multimolecular Layers. Journal of the American Chemical Society (1938) 60 (2) 309–319] (1. ábra).

Feb., 1938 ADSORPTION OF GASES IN MULTIMOLECULAR LAYERS 309

[CONTRIBUTION FROM THE BUREAU OF CHEMISTRY AND SOILS AND GEORGE WASHINGTON UNIVERSITY]

Adsorption of Gases in Multimolecular Layers

BY STEPHEN BRUNAUER, P. H. EMMETT AND EDWARD TELLER

Introduction

The adsorption isotherms of gases at temperatures not far removed from their condensation points show two regions for most adsorbents: at low pressures the isotherms are concave, at higher pressures convex toward the pressure axis. The higher pressure convex portion has been variously interpreted. By some it has been attributed to condensation in the capillaries of the adsorbent on the assumption that in capillaries of molecular dimensions condensation can occur at pressures far below the vapor pressure of

I. The Polarization Theory of DeBoer and Zwicker

According to DeBoer and Zwicker, the induced dipole in the i th layer polarizes the $i + 1$ st layer, thus giving rise to induced dipole moments and binding energies that decrease exponentially with the number of layers. If we call the dipole moment of a molecule in the i -th layer μ_i , it follows that

$$\mu_i = c_i C \quad (1)$$

where c_i and C are appropriate constants, C actually being equal to μ_i/μ_{i-1} . The corresponding

1. ábra. A híres Brunauer–Emmett–Teller-cikk

Az elmélet többrétegű adszorpcióval számol, tehát a Langmuir-féle adszorpcióval ellentétben a felületi megkötődés nem korlátozódik egy rétegre. A többrétegű adszorpció lehetőségét először Polányi Mihály (1891–1976) vetette fel, de azt akkor elutasították [1,3]. Polányi elképzelését több cikkben is publikálta, de doktori disszertációja [Gázok (gőzök) adszorpciója szilárd nem illanó adsorbensen. Budapesti Tudományegyetem, 1917] is e témáról szolt. Nernstnek és Einsteinnek a dipólus kölcsönhatáson alapuló modell nem tetszett. Polányi elméletének lényeges vonása az volt, hogy a felület vonzóerőt fejt ki az adszorbeált részecskékre, ami független a hőmérséklettől. Az erő a potenciális energia felületközeli változásával jellemezhető. Modelljével kiszámítható volt az adszorpció izotermák változása a hőmérséklet függvényében. E tekintetben is érdekes, hogy a BET-elmélet három szerzője közül kettő magyar. Brunauer összefoglaló munkájában (The Adsorption of Gases and Vapors, Volume 1 (Oxford University Press, 1943) így

írt Polányi elméletéről: „... kiemelkedő sikerességgel ad számot a fizikai adszorpció hőmérsékletfüggéséről”, „az egyetlen elmélet, amely kvantitatívan tudja kezelni a heterogén felületeken végbemenő adszorpciót”.

A BET-elmélet rövid leírását a következőkben adhatjuk meg [1, 2].

A Langmuir-féle elmélet szerint az adszorbens és az adsorbátum közötti jelentős kölcsönhatás miatt egyrétegű adszorpció alakul ki. Gőzök adszorpciójakor – különösen ha az adott hőmérsékleten a gőznyomás megközelíti a megfelelő telített gőznyomást – többmolekulás réteg is kialakulhat a felületen, ha az adszorpció erők és a gázmolekulák közötti vonzóerők összemérhetőek.

A BET-elmélet szerint a következő adszorpció izoterma adódik:

$$\theta = \frac{cp}{(p_0 - p)(1 + (c - 1)(p/p_0))},$$

illetve praktikus okokból átalakítva (linearizálva):

$$\frac{1}{v[(p_0/p) - 1]} = \frac{c - 1}{v_m c} \left(\frac{p}{p_0} \right) + \frac{1}{v_m c},$$

ahol θ a borítottság, ami a felületi koncentráció és a maximális felületi koncentráció hányadosa, p és p_0 a folyadékfázis egyensúlyi, illetve telített gőznyomása, c állandó, ami tartalmazza az adszorpció és a deszorpció energiákat, vagyis ezeknek a folyamatoknak a sebességével kapcsolatos, v és v_m az aktuális borítottság, illetve az egymolekulás teljes borítottságnak megfelelő határérték. A bal oldalt a relatív nyomás (p/p_0) függvényében ábrázolva egy mért izoterma esetén az egyenes iránytangenséből a v_m és a c kiszámítható. Szilárd adszorbenseknél, ahol a valódi felület nem ismert, fajlagos értékkel számolunk, vagyis v -t 1 g adszorbensre számoljuk, így viszont a valódi felület kiszámítható.

Az egyenlet névadói

Brunauer István (Stephen)

Brunauer István (Budapest, 1903. február 12. – Potsdam, New York, 1986. július 6.) szegény családba született, édesanyja varrónőként tartotta el a családot, mert édesapja vaksága miatt nem dolgozott. 1921-ben kivándorolt az Egyesült Államokba. Egyetemi tanulmányait a City College of New York és a Columbia University angol és kémia szakán végezte. 1925-ben vegyész mérnöki



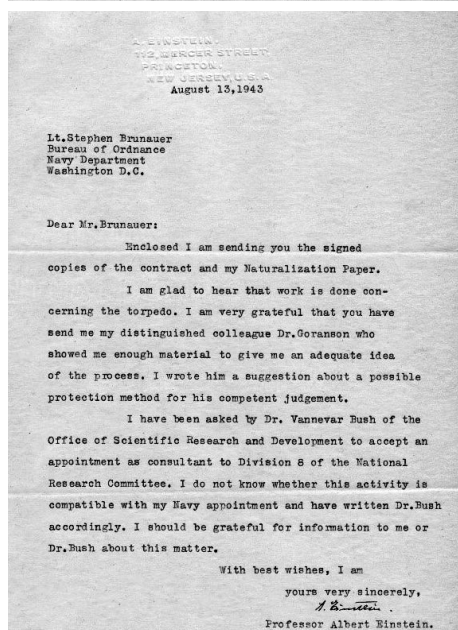
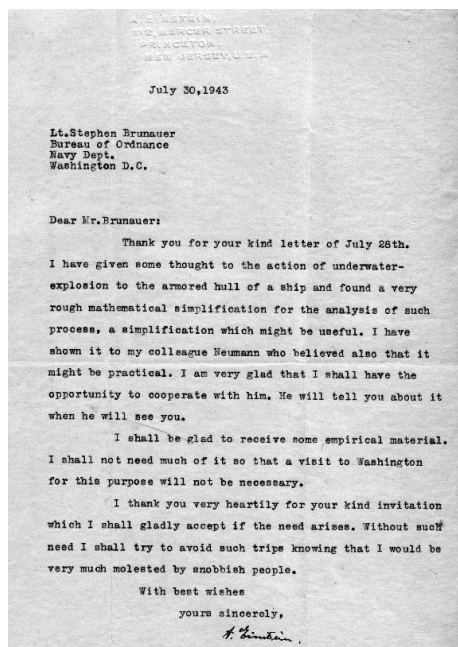
diplomát is szerzett a George Washington Egyetemen. Doktori fokozatát Baltimore-ban, a Johns Hopkins Egyetemen nyerte el 1933-ban. Itt már azzal foglalkozott, ami később is fő témája maradt, ugyanis a nitrogén vas-katalizátoron történő adszorpcióját tanulmányozta, amelynek az ammóniaszintézisben van nagy jelentősége. Ezt a témát folytatta az Egyesült Államok Mezőgazdasági Minisztériumának egyik kutatólaboratóriumában is, ahol Emmett munkatársa lett [4].

Az itteni munka vezetett a BET-egyenlet megszületéséhez, Tellernek a modell alapján az elméleti levezetésben jutott szerep.

1931-ben megnősült, és a következő évtizedben három gyermekük született. Felesége, Esther Delia Caukin (1901–1959) a kaliforniai Jacksonban született. Apja villanyszerelő volt. Baloldali nézeteket vallott, míg anyja a nők egyenjogúságáért küzdött. Nem csoda, hogy a lányuk is a haladó eszmék elkötelezettje lett. 1927-ben szerzett doktori fokozatot történelemből.

Brunauer 1942-ben, az USA háborúba lépése után csatlakozott a Haditengerészethez. Lieutenant majd Commander Lieutenant katonai rangot kapott, ami egy kisebb egység parancsnoka volt a tengerészetnél, magyarul korvettkapitánynak vagy fregattkapitánynak lehet fordítani. A Fegyverkezési Hivatal felügyelete alá tartozó kutatócsoport tagja lett, amelyik nagy erejű robbanóanyagokkal foglalkozott. Meghívta Einsteint tanácsadónak. Einstein már korábban levelezett Esther Brunauerrel. Esther ugyanis az American Association of University Women aktív tagja, később a Külügyminisztérium magas rangú hivatalnokja volt, és a nemzetközi ügyeket irányította, így segíteni tudta a Németországból menekült tudósok amerikai elhelyezkedését. Einstein Neumann Jánossal is konzultált a projekttel kapcsolatban, ahogy az a levelezésből kiderül (2. ábra).

Brunauer a második világháború után leszerelt, de folytatta munkáját a haditengerészetnél, illetve a Fegyverkezési Hivatal K + F részlegének vezető vegyésze lett. A bajok 1950-től kezdődtek, amikor McCarthy megindította az antikommunista hadjáratát. Ezzel olyan örületet generált, ami az Egyesült Államok egyik legsötétebb korszakát hozta, ártatlan emberek ezreit hurcolták meg, fosztották meg a munkájuktól. Így járt a Brunauer házaspár is. Stephen Brunauerrel előkotorták, hogy egyetemi évei alatt tagja volt az Ifjú Munkások Ligájának. Ezért korábban már az Atomenergiai Bizottság tagadta meg tőle a biztonsági igazolás kiadását. Ekkor még folytathatta a munkáját, de 1951-ben, amikor tudomására jutott, hogy a haditengerészet is bevonni készül a biztonsági engedélyét, inkább felmondott. Ezzel gyakorlatilag egyidejűleg a felesége ellen is eljárást indítottak. Őt először felmentették, de 1952-ben már elbocsátották a Külügyminisztériumból. A biztonsági kockázatot indokolni nem kellett, a vádakat megalapozó tanúvallomásokot, dokumentumokat még a munkáltató sem ismerhette meg. Esther Brunauer a Kongresszusi Könyvtárban, a Filmtanácsnál, illetve kiadóknál dolgozott később. Stephen Brunauer a chicagói Portland Cementnél helyezkedett el, majd 1965-ben a Clarkson Egyetem Kolloid- és Felületi Kémiai Intézetének lett a vezetője, ahol 1973-ig, nyugdíjba vonulásáig dolgozott. Felesége halála után, 1961-ben feleségül vette



2. ábra. Két levél az Albert Einstein és Brunauer közötti levelezésből

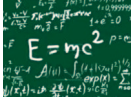
(U.S. National Archives and Records Administration)

egyetemi tanártársát, a magyar származású Dalma Hunyadi (1924–2017).

Brunauer járt Magyarországon is. E sorok írójának lehetősége volt meghallgatni a „Pore structure of solids” című előadását a Colloids Budapest 1975 konferencián – mindmáig a legnagyobb ilyen jellegű konferencián –, ahol a szakma legkiválóbbjai jelentek meg. Bár az életrajzai szerint már nyugdíjas volt, a résztvevők listáján mint a Clarkson College professzora szerepelt [5].

Paul Hugh Emmett

Paul Hugh Emmett (Portland, Oregon, 1900. szeptember 22. – Portland, 1985. április 22.) édesapja vasúti mérnök, édesanyja szakács volt a vasúttársaságnál. Emmett a Washington High Schoolban kitért matematikában, fizikában és kémiában, de itt kötött életreszóló barátságot a későbbi kétszeres Nobel-díjas Linus Pau-



linggal (Portland, Oregon, 1901 – Kalifornia, 1994) is. Paulinghoz hasonlóan tanulmányait előbb az Oregoni Állami Mezőgazdasági Egyetem (ma Oregon State University, Corvallis) vegyészmérnöki szakán folytatta, majd PhD-fokozatát – fizikai kémiából – a California Institute of Technology (Kaliforniai Műszaki Egyetem, Pasadena) egyetemen szerezte meg. Közös publikációjuk is született [The Crystal Structure of Barite (1925)].

Végül sógorok lettek, mert Emmett 1976-ban Pauline Paulingot (1902–2003) választotta harmadik feleségül. Emmett 1925-ben rövid ideig tanított az Oregoni Állami Egyetemen, aztán állást vállalt a Mezőgazdasági Minisztérium kutatólaborjában, amelynek fő témája a nitrogén megkötésének vizsgálata volt, amibe beletartoztak az ammónia szintézisével és bomlásával kapcsolatos katalitikus folyamatok. Amint már említettük, ide került Brunauer is hét évvel később. 1937-től a Johns Hopkins Egyetemen lett tanszékvezető volt, amíg a Manhattan-projekt 1943-ban el nem szűlt. Harold Urey csoportjában a feladata az U-235 és az U-238 uránizotópok szétválasztása, és gáz-halmazállapotú urán-hexafluoriddá alakítása volt. Itt 16 hónapig dolgozott, de utána még az Oak Ridge-i Nemzeti Laboratóriumban tanácsadó maradt 22 évig. 1944-től olajkutatással foglalkozott a pittsburgh-i Mellon Ipari Kutató Intézetben. 1955-től 1971-es nyugdíjazásig újra a Johns Hopkins Egyetem professzoraként dolgozott.

Teller Ede (Edward)

Teller Ede (Edward) (Budapest, 1908. január 15. – Stanford, Kalifornia, 2003. szeptember 9.) életrajzával nem foglalkozunk részletesen. Róla nagyon sok magyar nyelvű cikkben és könyvben olvashatunk [6, 7, 8], illetve ő is megírta visszaemlékezéseit. Természetesen az atom- és a hidrogénbomba történetében játszott szerepe a legismertebb, de tudományos eredményei között a BET-egyenlet is mindig szerepel. Ezt az eredményét ő maga is nagyra tartotta [Hargittai István: Fizikai Szemle (2008) 58, 2–11].

Fizikusként tartjuk számon, de a kémiában, fizikai kémiában is jelentőset alkotott. Nevét viseli a Jahn–Teller-effektus (vagy

Jahn–Teller-torzítás) is. Ezt Hermann Arthur Jahn (1907–1979) német–angol fizikussal 1937-ben publikálták. Az elv lényegében azt állítja, hogy bármelyik nemlineáris molekula alapállapotában geometriailag torzul (spontán szimmetriasértés), ami energetikailag kedvező, és egyúttal megszünteti a pályák degeneráltságát.

Élete dióhéjban: Apja ügyvéd volt. Teller a Budapesti Középiskolai Tanárképzőben (Mintagimnázium, ma ELTE Trefort Gyakorlógimnáziuma) érettségizett 1925-ben. Németországban a Karlsruhei Egyetemen vegyészmérnökséget tanult (1927), majd a Müncheni (1928) és a Lipcsei Egyetemen fizikusnak képezte magát. Lipcsében Heisenbergnél doktorált 1930-ban. Göttingenben James Franck Nobel-díjas tanársegédje. Dolgozott Fermivel és Bohrral is. 1934-ben Németországból Angliába menekül, 1935-ben érkezik az Egyesült Államokba, ahol a George Washington Egyetemen tanít. Ezután New Yorkban, a Columbia Egyetemen, majd Chicagóban, Fermi csoportjában dolgozott az első atomreaktor építésén. 1942-től a Manhattan-projekt keretében az atombombában dolgozott Los Alamosban. A második világháború után szorgalmazta a hidrogénbomba létrehozását. 1952-től a University of California Radiation Laboratory Livermore (ma Lawrence Livermore Nemzeti Laboratórium) a munkahelye, ahol a tudományos kutatás mellett fegyverfejlesztés a fő profil.

IRODALOM

- [1] Erdely-Grúz T., Schay G., Elméleti fizikai kémia II. kötet, Tankönyvkiadó, Budapest, 1964. 379–412.
- [2] K. S. W. Sing, Pioneers of Adsorption Science. I. Stephen Brunauer. Adsorption Science & Technology, Vol. (2014) 32, 343–350.
- [3] Füstöss L., Polányi néhány eredménye a fizika oldaláról szemlélve. Polanyiana (2003) 12, 105–116.
- [4] Kenneth S. W. Sing, Langmuir (1987), Stephen Brunauer (1903–1986). 3, 2–3.
- [5] International Conference on Colloid and Surface Science (Colloids 1975), Budapest, 1975. szeptember 15–20.
- [6] Hargittai I., Teller (ford. Gács János). Akadémiai Kiadó, Budapest, 2011.
- [7] Fizikai Szemle (2008) 58(1). Teller Edének szánt centenáriumi szám.
- [8] Czeisel E., Tudósok, gének, tanulságok. Galenus Kiadó, 2006, 297–333.

JEGYZETEK

1) A Wikipédia általában jó forrás, de feltétlenül ellenőrizni kell. Tipikus példát láthatunk Brunauer esetében. Az angol nyelvű honlap (https://en.wikipedia.org/wiki/Stephen_Brunauer) nem Brunauer, hanem tévesen Emmett képét közli (Emmett honlapján egy másik fotó van). Ennek magyar fordítása (https://hu.wikipedia.org/wiki/Brunauer_István) nem közöl fotót. Viszont a Google-keresésnél (<https://www.google.com/search?client=firefox-b-d&q=Stephen+Brunauer>) a magyar nyelvű összefoglalóban megint a fentebbi Emmett-fotó jelenik Brunaueré helyett.

2) Az nyilvánvaló, hogy Tellert Brunauer vont be a közös munkába. Az, hogy ez mikor és hogyan történt, elég zavaros a visszaemlékezésekben. Az angol nyelvű Wikipédia-szócikk szerint: „He pursued graduate studies in chemistry and engineering, earning his master’s degree in 1929 from George Washington University, where he was a student of Edward Teller, who later described his confidence in asserting his theories and challenging his teachers.” A szócikk szerzője Teller könyvére hivatkozik: Teller, Edward, *Memoirs: A Twentieth Century Journey in Science and Politics*. Basic Books. 2001, 125–6. Teller akkor még Németországban volt, 1935-ben tanított az említett egyetemen. A magyar nyelvű szócikk szerzője (nagy részben az angol fordítása) már észrevette, hogy valami probléma van. Vélhetően ezért így módosította ezt a mondatot: „1929-ben szerzett vegyészmérnök mester diplomát a washingtoni George Washington Egyetemen, ahol később találkozott Teller Edével”. Brunauer második felesége nyilván férje korábbi elbeszélése alapján így írt (<https://montazsmagazin.hu/dr-vitez-hunyadi-dalma/>): „Férjem, dr. Brunauer István tizennyolc évesen az USA-ba ment rokon látogatába, és ottragadt. Elvégezte az egyetemet, majd Berlinbe ment tanulmányait folytatni. Itt ismerkedett meg az ugyancsak ott tanuló Tellerrel. Jó barátok lettek, és egy barátságos hógolyócsata szünetében Brunauer elmondta Tellernek a „finoman feloldott részecskeké» mérhetőségére kialakított elméletét és módszerét. Teller elvégzett néhány kalkulációt, és alátámasztotta az elméletet. Ezeket később Emmett is jóváhagyta. A komplikált mérő apparátus is elkészült, és hamarosan nélkülözhetetlen lett világszerte.” Brunauer első feleségével 1933-ban volt ösztöndíjjal tanulmányút Berlinben. Teller már nem volt tanuló. Brunauer és Teller találkozhatott Berlinben, a hó is eshetett, Tellernek nagy valószínűséggel komoly szerepe volt az egyenlet levezetésében, de az azért kevésbé elképzelhető, hogy egy hógolyócsata szünetében megismerkedett egy számára idegen területtel, és megcsinálta volna a levezetéseket.



**Balról jobbra:
Teller, Emmett
és Brunauer
1969-ben
(Oregon State
University
archivuma)**