

MTA DOKTORI ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

**ELLENTÉTES TÖLTÉSŰ POLIELEKTROLITOK ÉS TENZIDEK
ASSZOCIÁCIÓJA**

Mészáros Róbert

**Eötvös Loránd Tudományegyetem
Kémiai Intézet**



Budapest, 2009. december

I. Bevezetés

Az ellentétes töltésű makromolekulákat és amfipatikus anyagokat tartalmazó vizes elegyek gyakorlati felhasználására számos példát találhatunk. Kationos polielektrolitokat és anionos tenzideket alkalmaznak például egyes kozmetikumok, samponok, és háztartási tisztítószerek fő komponenseiként. E rendszerek egyik legújabb alkalmazása az alternáló polielektrolit/ionos tenzid multirétegekkel történő felületmódosítás. Ezen kívül különféle szerves anyagok, illetve festékek polielektrolit/tenzid komplexekben történő szolubilizációjára épülnek egyes szennyvíztisztítási és kromatográfiás alkalmazások.

Az ipari alkalmazásokat alapvetően meghatározzák a polielektrolit/tenzid elegyek fázistulajdonságai, felületi sajátságai és a kísérletileg gyakran megfigyelt nem-egyensúlyi jellegük. Ezért a polielektrolit/tenzid komplexek képződésének és a polielektrolit/tenzid elegyek határfelületi tulajdonságainak ismerete a témakörben alapvető fontosságú. Bár az ellentétes töltésű makromolekulák és tenzidek oldatfázisban történő asszociációját az utóbbi két évtizedben intenzíven kutatják, számos megválaszolatlan kérdés maradt. A makromolekula/tenzid kölcsönhatásra vonatkozó termodinamikai információt a tenzid kötési izotermája szolgáltatja (ami az egységnyi tömegű polimeren megkötött tenzid mennyiségét adja meg az egyensúlyi tenzidkoncentráció függvényében). Az irodalomban fellelhető kötési izotermák analízise alapján a semleges polimerek és ionos tenzidek asszociációja a tenzidionok polimer láncon történő kooperatív kötődésével értelmezhető. Ellentétes töltésű polielektrolitok és ionos tenzidek esetében azonban az asszociáció mechanizmusát megvilágító tenzid kötési izotermák kísérleti meghatározása körülményes, illetve a publikált izotermák megbízhatósága kérdéses. Ennek ellenére a tenzid micelláris formában történő kötődésének koncepcióját egyfajta dogmaként, kritika nélkül alkalmazza a tudományos közösség.

Az irodalomban ellentmondás van a kooperatív tenzidkötésre épülő elméleti és szimulációs tanulmányok egyes jóslatai és a kísérleti megfigyelések között. Az elméleti munkák szerint a polielektrolit/tenzid kölcsönhatás következtében képződő csapadék feloldódik a tenzid feleslegében, azaz szolvatált makromolekula/tenzid komplexek termodinamikailag stabil oldata képződik. Ugyanakkor a kísérleti tanulmányok szerint a csapadék sok esetben nem oldódik fel még extrém nagy tenzidkoncentrációnál sem. Nem értelmezhető az elméleti munkák alapján, hogy mi lehet az oka a gyakran tapasztalt

nem-egyensúlyi állapotok kialakulásának. Ezen felül az irodalom nem egységes abban a kérdésben, hogy az inert elektrolit jelenléte hogyan befolyásolja a kétfázisú összetétel tartomány szélességét (csökkenti vagy növeli).

A tömbfázisbeli komplexképződéshez hasonlóan az ellentétes töltésű makromolekulák és amfipatikus anyagok határfelületeken történő asszociációjával kapcsolatosan is sok a megválaszolatlan kérdés. A levegő/oldat határfelület esetén például nem tisztázott egyértelműen, hogy a felületi feszültség hogyan változik a komponensek oldatbeli koncentrációjával. Nem világos az sem, hogy a polielektrolitot és tenzidet tartalmazó adszorbeált réteg összetételét és szerkezetét hogyan befolyásolja az oldatban képződött komplexek jellege.

A munkám legfontosabb eredménye annak bizonyítása, hogy a polielektrolit/tenzid elegyek egy bizonyos koncentrációtartományban kinetikailag stabil kolloid diszperziók és nem pedig termodinamikailag stabil egyfázisú rendszerek, ahogy azt korábban az irodalomban állították. A kolloid diszperzió képződésének koncepciója a polielektrolit/tenzid elegyek oldatbeli és felületi tulajdonságainak ellentmondásmentes értelmezését teszi lehetővé. A kutatás során nyert új ismeretek ezen rendszerek tulajdonságainak szabályozására is felhasználhatók.

II. Vizsgált modellrendszerek

Az értekezésben elsősorban kationos polielektrolitokat és nátrium-dodecilszulfátot (NaDS) tartalmazó vizes elegyeket vizsgáltam. A polielektrolit modelleket tekintve a hangsúly elsősorban az elágazó poli(etilén-imin)-en (PEI) és a lineáris poli(vinil-amin)-on (PVAm) volt. Ezen kívül a poli(diallil-dimetil-ammónium-klorid) (PDAC) és NaDS elegyét is tanulmányoztam. A poliaminok gyenge polielektrolit jellege fontos szempont volt, hiszen az irodalomban eddig főleg erős polielektrolitokat és ionos tenzideket tartalmazó elegyeket vizsgáltak.

Munkám célja volt annak feltárása is, hogy hogyan lehet a polielektrolit/tenzid elegyek tulajdonságait szabályozni nem-ionos adalék anyagok segítségével. Ezért a PEI/NaDS elegyek tulajdonságait n-dodecil- β -D-maltozid ($C_{12}G_2$), továbbá poli(etilén-oxid) (PEO) jelenlétében is tanulmányoztam. A felületi tulajdonságokat szilika/vizes oldat, illetve muszkovit csillám/vizes oldat határfelületeken vizsgáltam.

III. Kísérleti módszerek

Az irodalomban elsőként alkalmaztam az úgynevezett megállított áramlásos (stop flow) keverés módszerét az ellentétes töltésű makromolekulákat és amfipatikus anyagokat tartalmazó vizes elegyek készítéséhez. Ez a keverési módszer jól definiált és hatékony, hiszen a polielektrolit és tenzidoldat 10 ms alatt elegyedik egymással.

A polielektrolit/tenzid elegyek tömbfázisbeli tulajdonságainak jellemzéséhez különféle kísérleti módszerek együttes alkalmazására volt szükség. A poliaminok pH-függő töltését potenciometrikus titrálás segítségével határoztam meg normál és nehéz vízben. A polielektrolit molekulákhoz kötődött tenzid mennyiségének meghatározására az egyensúlyi dialízis módszerét alkalmaztam, illetve egy új módszert is kidolgoztam. A polielektrolit/tenzid komplexek töltését, átlagos méretét és aggregációjának folyamatát elektroforetikus mobilitás, dinamikus fényszórás és koaguláció kinetikai mérésekkel vizsgáltam.

A kationos polielektrolitot és NaDS-t tartalmazó elegyek szabadfelszíni viselkedését felületi feszültség mérésekkel követtem nyomon. A polielektrolit adszorpció kinetikáját és reverzibilitását, valamint a polielektrolit és tenzid molekulák együttes adszorpcióját szilika/vizes oldat határfelületeken reflektometriás és ellipszometriás mérésekkel tanulmányoztam. Ugyanezen határfelület elektromos tulajdonságait áramlási potenciál mérésekkel jellemeztem. Végül, a kationos polielektrolitot és anionos tenzidet tartalmazó muszkovit csillám/vizes oldat határfelületi rétegek közötti kölcsönhatásokról felületi erő (SFA) mérések segítségével nyertem információt.

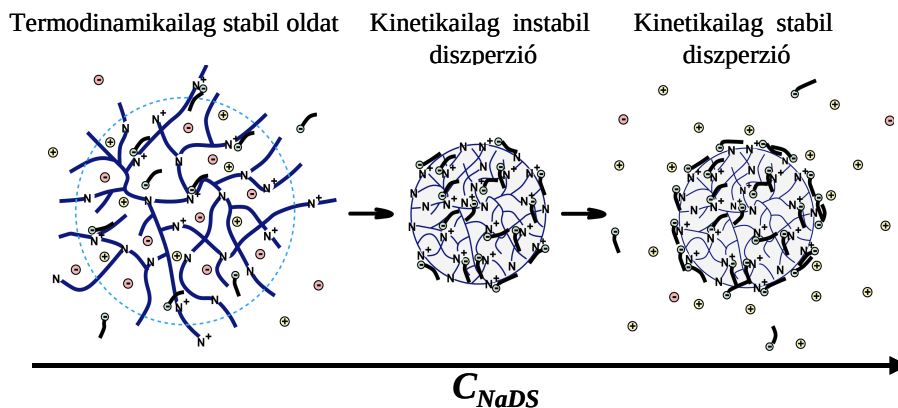
IV. Új tudományos eredmények

Az értekezésben bemutatott új tudományos eredményeimet az alábbi tézispontokban foglalom össze:

Kationos polielektrolitok és anionos tenzidek asszociációja oldatfázisban

1. Az ionos tenzidek ellentétes töltésű polielektrolitokon kötött mennyiségének mérésére új módszert dolgoztam ki. Az elektroforetikus mobilitás mérésén alapuló módszer a kötési izoterma egyszerű és gyors meghatározását teszi lehetővé. Az így meghatározott kötési izotermák jól egyeznek a független kísérleti módszerrel mért kötési izotermákkal. A módszer kiterjeszthető az ellentétes töltésű tenzidionok biomakromolekulákhoz kötött mennyiségének mérésére is.
2. Megállapítottam, hogy az oldószer izotóp szubsztitúciója elsősorban a PEI molekulák protonálódási egyensúlyán keresztül fejti ki hatását a PEI/NaDS komplexképződésre. A $\text{pH}(\text{pD}) < 4$ tartományban, egyenlő deutérium és hidrogén ion aktivitás értékeknél a PEI molekulák átlagos protonáltsági foka megegyezik normál és nehéz vízben, ezért hasonló átlagos elektrokinetikai töltésű polielektrolit/tenzid komplexek keletkeznek mindkét oldószerben. Ugyanakkor a $7 < \text{pH}(\text{pD}) < 10$ tartományban azonos $\text{pH}=\text{pD}$ értékeknél lényegesen nagyobb töltésű PEI molekulák keletkeznek nehéz vízben. Ennek megfelelően ebben a pH tartományban azonos összetétel esetén a PEI/NaDS komplexek töltött jellege, szerkezete és az elegyek fázistulajdonságai is jelentősen eltérnek a kétféle oldószerben.
3. A hiperelágazó PEI/NaDS rendszerre vonatkozó vizsgálataim alapján a polielektrolit/tenzid komplexképződésre új magyarázatot adtam, melyet az alábbi sematikus ábrán szemléltetek. Ellentétben a korábbi elképzelésekkel, kis NaDS koncentrációknál a tenzid nem kooperatív módon, hanem monomer formában kötődik a PEI molekulák protonált amincsoportjaihoz. A tenzidkötődés következtében az elegy pH-ja növekszik, továbbá a PEI/NaDS komplexek átlagos mérete és nettó pozitív töltése csökken. Ebben az összetétel tartományban a rendszer a polielektrolit/tenzid komplexek termodinamikailag stabil oldata. Egy kritikus NaDS koncentráció felett a komplexek méretének csökkenése és a kötött

tenzid mennyiségének növekedése miatt kompakt és közel elektroneutrális PEI/NaDS nanorészecskék kolloid diszperziója képződik. A megnövekedett diszperziós kölcsönhatások miatt a primer PEI/NaDS részecskék aggregálódnak és csapadék keletkezik. A tenzidkoncentráció további növelésével a dodecil-szulfát ionok a PEI/NaDS nanorészecskék felületén adszorbeálódnak, ami a negatív töltésű nanorészecskék kinetikailag stabil diszperziójának képződéséhez vezet.



4. Megmutattam, hogy tenzidfeleslegben (vagyis ha a tenzidionok mennyisége jelentősen meghaladja a makromolekula ionos csoportjainak mennyiségét) a PEI/NaDS, PVAm/NaDS, valamint a PDAC/NaDS komplexek koagulációjának sebessége a DLVO-elméletnek megfelelően változik a NaCl koncentráció függvényében. Ez egyértelmű bizonyíték arra, hogy –ellentétben az irodalomban elterjedt nézettel– a tanulmányozott polielektrolit/tenzid elegyek az adott összetétel tartományban nem termodinamikailag stabil oldatok, hanem elektrosztatikusan stabilizált kolloid diszperziók. A kinetikailag stabil kolloid diszperzió képződése érthetővé teszi a polielektrolit/tenzid rendszerekben megfigyelt nem-egyensúlyi állapotok kialakulását.
5. Megállapítottam, hogy tenzidfelesleg esetén a tanulmányozott polielektrolit/tenzid diszperziók kritikus koaguláltató elektrolit koncentrációja annál nagyobb, minél nagyobb a makromolekula töltése és a tenzid koncentrációja. Ez annak a következménye, hogy az egyedi tenzid molekulák egyensúlyi koncentrációjának, valamint a makromolekulához kötött tenzid mennyiségének növekedése egyaránt

- növeli az anionos tenzid adszorbeált mennyiségét a polielektrolit/tenzid nanorészecskék felszínén. Ez a nanorészecskék között ható elektrosztatikus taszító erők és ezáltal a diszperziójuk kinetikai stabilitásának nagymértékű növekedéséhez vezet.
6. Igazoltam, hogy a PEI/NaDS elegyek lehetnek nem-egyensúlyi állapotban polielektrolit felesleg mellett is (vagyis ha a PEI protonált amincsoportjainak mennyisége meghaladja az anionos tenzid mennyiségét), ha a PEI molekulák töltése elegendően nagy. Ekkor egy kritikus tenzid koncentráció felett a pozitívan töltött polielektrolit/tenzid nanorészecskék kolloid diszperziója képződik. Ennek a diszperzióknak a kinetikai stabilitását a PEI molekulák kötött tenzidionok által nem kompenzált töltései biztosíthatják.
 7. A kolloid diszperzió képződésének koncepciója alapján az inert elektrolitnak a polielektrolit/tenzid elegyek fázistolajdonságaira kifejtett, a korábbi munkák alapján ellentmondásosnak tűnő hatása is érthetővé válik. Bizonyítottam, hogy az ionerősség növelése –az alkalmazott elektrolit koncentráció és összetétel tartományban– a vizsgált polielektrolit/tenzid elegyek kinetikailag stabil összetétel tartományát csökkenti és nem az egyensúlyi kétfázisú koncentrációtartomány nagyságát növeli.
 8. Megmutattam, hogy a polielektrolit és tenzid oldatok elegyítésének sorrendje jelentősen befolyásolhatja a kationos polielektrolit/NaDS elegyek kinetikusan stabil összetétel tartományát. Abban az esetben, ha a tenzid oldatát lassan adagoljuk a polielektrolit oldatához, a polielektrolit/tenzid nanorészecskék irreverzibilisen koagulálnak a köztes tenzidkoncentrációknál, ahol a részecskék csak kismértékben töltöttek. Ha viszont gyorsan elegyítjük a komponenseket, vagy a polielektrolit oldatot adjuk a tenzid oldatához, akkor elektrosztatikusan stabilizált kolloid diszperzió jön létre.
 9. Bizonyítottam, hogy az alkalmazott keverési módszer hatékonysága jelentősen befolyásolja a poliamin/NaDS elegyek oldatbeli jellemzőit. A megállított áramlásos keverés esetén kisebb méretű polielektrolit/tenzid komplexek keletkeznek és a kinetikailag stabil kolloid diszperzióhoz tartozó koncentráció tartomány nagyobb, mint a kevésbé hatékony keveréssel készített elegyek esetén.

Az oldatkészítésnek az elegyek tömbfázisbeli tulajdonságaira gyakorolt hatása a polielektrolit/tenzid komplexek lokális aggregációjának sebességétől függ, amely jelentősen megnövekedhet a kevésbé hatékony keverési módszerek alkalmazása esetén. A keverés hatása annál jelentősebb, minél nagyobb a polielektrolit koncentrációja és töltése.

- 10.** Megmutattam, hogy a PEI/NaDS elegyek kinetikusan stabil összetétel tartománya semleges tenzid hozzáadásával is befolyásolható. N-dodecil- β -D-maltozid jelenlétében negatív töltésű PEI/NaDS/ $C_{12}G_2$ nanorészecskék elektrosztatikusan stabilizált kolloid diszperziója keletkezik nagy NaDS koncentrációknál. A nem-ionos tenzid jelenlétében a polielektrolit/tenzid komplexek áttöltődése kisebb NaDS koncentrációnál történik, mint $C_{12}G_2$ nélkül. Ez a megfigyelés az anionos és nem-ionos tenzidmolekulák polielektrolit/tenzid nanorészecskék felületén történő szinergikus adszorpciójával értelmezhető. A szinergikus tenzidkötődés fontos következménye, hogy a kinetikailag stabil koncentráció tartomány kiszélesedik a PEI/NaDS rendszerhez képest.
- 11.** Bizonyítottam, hogy a tenzid feleslegben képződő PEI/NaDS diszperzió kinetikai stabilitását poli(etilén-oxid) adalék segítségével is szabályozhatjuk. A PEO jelenlétének legfontosabb következménye az, hogy adszorbeálódik a hidrofób PEI/NaDS részecskék felszínén. Ha a nem-ionos polimer adszorbeált mennyisége kicsi, akkor a polielektrolit/tenzid diszperzió kinetikai stabilitása csökken a részecskék között kialakuló hídkötések miatt. A telítés közeli adszorbeált PEO mennyiségnél viszont kompakt hidofil héjjal és hidrofób maggal rendelkező nanorészecskék diszperziója keletkezik. Szemben az elektrosztatikusan stabilizált PEI/NaDS diszperziókkal, ennek a diszperziónak a kinetikai stabilitása nagy ionerősség esetén is fennmarad, a nanorészecskék adszorbeált rétegei között fellépő szterikus taszító erők miatt.

Makromolekulák és tenzidek asszociációja levegő/vizes oldat határfelületen

- 12.** Rávilágítottam arra, hogy a makromolekula/tenzid elegyek szabadfelszíni adszorpciója esetében a komponensek adszorbeált mennyisége akkor határozható meg felületi feszültség mérésekből, ha a polimer és a tenzid közötti kölcsönhatás elhanyagolható. A kölcsönhatásmentes összetétel tartományban mind a tenzid, mind a semleges polimer felületi többletkoncentrációja meghatározható a Gibbs egyenlet segítségével. Ellentétes töltésű makromolekulákat és tenzideket tartalmazó elegyek esetében kölcsönhatásmentes összetétel tartomány nem definiálható a polielektrolit/tenzid asszociáció nem-kooperatív jellege miatt. Ebben az esetben a Gibbs egyenlet nem alkalmazható az adszorbeált mennyiségek meghatározására, mivel a polielektrolit aktivitásának mérésére –polielektrolit/tenzid elegyekben– jelenleg nincs módszer.
- 13.** Megmutattam, hogy a kolloid diszperzió képződésének koncepciója új megvilágításba helyezi a polielektrolit/tenzid elegyek felületi tulajdonságaira vonatkozó munkák eredményeit. Az irodalomban gyakran leírt multimolekulás felületi rétegek kialakulása a polielektrolit/tenzid diszperziók kinetikailag stabil összetétel tartományához köthető. Az alkalmazott kísérleti körülményektől függően a polielektrolit/tenzid nanorészecskék különböző mértékben befolyásolhatják az egyes felületi mérések eredményeit. Ezért a különféle módszerekkel –ugyanazon összetétel mellett– meghatározott adszorbeált mennyiség értékek között jelentős eltérések lehetnek. Megállapítottam, hogy az általam alkalmazott keverési eljárásoknak nincs hatása a vizsgált polielektrolit/tenzid rendszerek felületi feszültség izotermáira. Ez azzal magyarázható, hogy a kevésbé hatékony keverés során keletkező nagyméretű polielektrolit/tenzid aggregátumok szabadfelszíni adszorpciója gátolt.

PEI/NaDS asszociáció szilárd/vizes oldat határfelületeken

- 14.** Megállapítottam, hogy a lúgos, illetve semleges pH tartományban adszorbeált PEI molekulák deszorpciója a PEI szegmensek és a szilika felszín között fellépő erős vonzó kölcsönhatások miatt rendkívül lassú folyamat. Kísérletileg detektálható deszorpció csak a pH jelentős csökkentésével érhető el ($\text{pH} \leq 3$), amikor a szilika felületének negatív töltése elhanyagolhatóvá válik. Megmutattam, hogy $\text{pH} < 11$ tartományban a PEI molekulák kompakt adszorbeált réteget képeznek a szilikán és adszorbeált mennyiségük nő az elektrolit koncentráció növelésével. A hiperelágazó PEI molekulák adszorpciója a szilika felület nagyobb mértékű áttöltését eredményezi a lineáris polielektrolitokat tartalmazó adszorbeált rétegekhez képest. Ezek a megfigyelések a szilika felület és az etilénimin csoport között fellépő nem-elektrosztatikus vonzó kölcsönhatásokkal értelmezhetőek.
- 15.** Megmutattam, hogy az előadszorbeált PEI rétegekben történő tenzidkötődés, illetve a PEI/NaDS elegyekből történő adszorpció különböző típusú adszorbeált rétegeket eredményez. Az első esetben a dodecil-szulfát ionok adszorpciója elsősorban az adszorbeált kompakt PEI réteg külső, oldat felőli részén történik két lépcsőben. A kötött tenzid mennyiségének növekedésével az adszorbeált réteg kezdeti pozitív elektrokinetikai töltése kompenzálódik és hidrofób határfelületi réteg alakul ki. A NaDS koncentrációjának további növelésével egy újabb adszorbeált tenzidréteg épül ki és a határfelületi tartomány nettó töltése negatívvá válik. Az elegyből történő adszorpció során képződő határfelületi rétegek jellemzői a PEI/NaDS komplexek adszorpciójával értelmezhetők. A pozitív töltésű PEI/NaDS komplexek adszorbeált mennyisége nő a NaDS koncentráció növelésével. Ugyanakkor a kinetikailag stabil kolloid diszperzió tartományában képződő negatív PEI/NaDS nanorészecskék adszorpciója elhanyagolható a negatív töltésű szilika és csillám felületen.

V. Az eredmények hasznosításának lehetőségei

A polielektrolit/tenzid elegyek fázistulajdonságainak értelmezésére adott új interpretációnak –a kolloid diszperzió képződés koncepciójának– többféle gyakorlati hasznosítása is lehetséges. Az értekezés alapján a komponensek elegyítésének módjával, valamint elektrolit, semleges tenzid vagy polimer adalék alkalmazásával a polielektrolit/tenzid elegyek kinetikailag stabil összetétel tartománya és a képződő aggregátumok mérete szabályozható. Ez az ismeretanyag új, kedvezőbb tulajdonságú samponok, kozmetikumok, gyógyszerek és hatékonyabb szennyvíztisztítási eljárások kidolgozását eredményezheti. Az eredmények egy másik alkalmazási lehetőségét a polielektrolit és tenzidmolekulákból felépülő speciális határfelületi rétegek tulajdonságainak szabályozása jelentheti. Végül fontos megjegyezni, hogy a jelenleg kereskedelmi forgalomban kapható háztartási tisztítószerek és kozmetikai termékek többnyire drága és nehezen lebomló anionos tenzideket tartalmaznak. A disszertációban bemutatott eredmények a környezetbarát semleges polimerek és tenzidek arányának növelését tehetik lehetővé az egyes termékekben.

VI. Az értekezés alapjául szolgáló közlemények

[1] Pojják K, Mészáros R*

"Novel Self-Assemblies of Oppositely Charged Polyelectrolytes and Surfactants in the Presence of Neutral Polymer"

Langmuir **2009**, 25, 13336-13339.

Impakt faktor: 4.097 (2008)

[2] Ábrahám Á, Mezei A, Mészáros R*

"The Effect of Salt on the Association Between Linear Cationic Polyelectrolytes and Sodium Dodecyl Sulfate"

Soft Matter **2009**, 5, 3718-3726.

Impakt faktor: 4.586 (2008)

[3] Mészáros R*

"The Thermodynamic Stability of the Mixtures of Hyperbranched Poly(Ethyleneimine) and Sodium Dodecyl Sulfate at Low Surfactant-to-Polyelectrolyte Ratios"

J. Coll. Int. Sci. **2009**, 338, 444-449.

Impakt faktor: 2.443 (2008)

- [4]Mezei A, Ábrahám Á, Pojják K, Mészáros R*
"The Impact of Electrolyte on the Aggregation of the Complexes of Hyperbranched Poly(ethyleneimine) and Sodium Dodecyl Sulfate"
Langmuir **2009**, 25, 7304-7312.
 Impakt faktor: 4.097 (2008)
- [5]Mezei A, Pojják K, Mészáros R*
"Non-Equilibrium Features of the Association Between Poly(vinylamine) and Sodium Dodecyl Sulfate: The Validity of the Colloid Dispersion Concept"
J. Phys. Chem. B. **2008**, 112, 9693–9699.
 Impakt faktor: 4.189
- [6] Péron N, Campbell RA, Nylander T, Vareikis A, Makuska R, Gilányi T, Mészáros R*
"Competitive Adsorption of Neutral Comb Polymers and Sodium Dodecyl Sulfate at the Air/Water Interface"
J. Phys. Chem. B **2008**, 112, 7410–7419.
 Impakt faktor: 4.189
- [7] Mezei A, Mészáros R*
"Novel Nanocomplexes of Hyperbranched Poly(ethyleneimine), Sodium Dodecyl Sulfate and Dodecyl Maltoside"
Soft Matter **2008**, 4, 586-592.
 Impakt faktor: 4.586
- [8]Peron N, Mészáros R*, Varga I, Gilányi T
"Competitive Adsorption of Sodium Dodecyl Sulfate and Polyethylene Oxide at the Air/Water Interface"
J. Coll. Int. Sci. **2007**, 313, 389-397.
 Impakt faktor: 2.309
- [9]Mezei A, Mészáros R*, Varga I, Gilányi T
"Effect of Mixing on the Formation of Complexes of Hyperbranched Cationic Polyelectrolytes and Anionic Surfactants"
Langmuir **2007**, 23, 4237-4247.
 Impakt faktor: 4.009
- [10]Mezei A, Mészáros R*
"A Novel Method for the Estimation of the Binding Isotherms of Ionic Surfactants on Oppositely Charged Polyelectrolytes"
Langmuir **2006**, 22, 7148-7151.
 Impakt faktor: 3.902
- [11]Bastardo LA, Mészáros R, Varga I, Gilányi T, Claesson PM
"Deuterium Isotope Effects on the Interaction between Hyperbranched Polyethyleneimine and an Anionic Surfactant"
J. Phys. Chem. B. **2005**, 109, 16196-16202.
 Impakt faktor: 4.033

- [12] Mészáros R*, Varga I, Gilányi T
"Adsorption of Poly(ethyleneimine) on Silica Surfaces: Effect of pH on the Reversibility of Adsorption"
Langmuir **2004**, 20, 5026-5029.
 Impakt faktor: 3.295
- [13] Dedinaite A, Mészáros R, Claesson PM
"Effect of Sodium Dodecyl Sulfate on Adsorbed Layers of Branched Polyethylene Imine"
J. Phys. Chem. B **2004**, 108, 11645-11653.
 Impakt faktor: 3.834
- [14] Mészáros R*, Thompson L, Varga I, Gilányi T
"Adsorption Properties of Polyethyleneimine on Silica Surfaces in the Presence of Sodium Dodecyl Sulfate"
Langmuir **2003**, 19, 9977-9980.
 Impakt faktor: 3.098
- [15] Mészáros R*, Thompson L, Bos M, Varga I, Gilányi T
"Interaction of Sodium Dodecyl Sulfate with Polyethyleneimine: Surfactant-Induced Polymer Solution Colloid Dispersion Transition"
Langmuir **2003**, 19, 609-615.
 Impakt faktor: 3.098
- [16] Mészáros R*, Thompson L, Bos M, de Groot P
"Adsorption and Electrokinetic Properties of Polyethylenimine on Silica Surfaces"
Langmuir **2002**, 18, 6164-6169.
 Impakt faktor: 3.248

VII. Az értekezés témájához kapcsolódó meghívott előadások

- [1] Mészáros R
"Non-equilibrium association of oppositely charged macromolecules and amphiphiles"
 EUROPEAN DETERGENT CONFERENCE Fulda, Németország, 2010.10.13-15.
- [2] Mészáros R, Mezei A
"Novel Nanocomposites of Hyperbranched Poly(Ethyleneimine), Sodium Dodecyl Sulfate and Dodecyl Maltoside"
 SPRING ACS NATIONAL MEETING, New Orleans, USA, 2008.04.06-10.
- [3] Mészáros R
"Interaction Between Polyethyleneimine and Sodium Dodecyl Sulphate at Silica Surfaces"
 Division for Surface Chemistry, Department of Chemistry, Royal Institute of Technology (KTH) and YKI, Institute for Surface Chemistry, Stockholm, Svédország, 2003 augusztus.

- [4] Mészáros R
“Dynamic and Static Adsorption Features of Polyethyleneimine on Silica Surfaces”
 Department of Inorganic, Analytical and Applied Chemistry, University of Geneva,
 Sciences II., Genf, Svájc, 2006 június.
- [5] Mészáros R
“Novel Aspects of Macromolecule/Surfactant Interactions”
 Unilever Research Port Sunlight, Bebington, Anglia, 2006 május.

VIII. Tudománymetriai adatok

Összes (megjelent) közlemények száma:*	44
Ebből referált folyóiratban megjelent:*	42
Összesített impakt faktor: **	108.97
Független hivatkozások száma:*	329

<i>Konferencia-kiadványban megjelent egyéb közlemények (< 6 oldal terjedelem):</i>	5
<i>Konferencia prezentációk száma (2 meghívott, 26-nál bemutató szerző):</i>	56
<i>Tudományos fórumokon és intézetekben tartott előadások (3 meghívott):</i>	9