

VB MA 6

NN 02963,

# LOCALISATIES OP GRENSVLAKKEN

REDE,  
UITGESPROKEN BIJ DE AANVAARDING  
VAN HET AMBT VAN LECTOR AAN DE  
LANDBOUWHOOGESCHOOL  
TE WAGENINGEN OP 2 FEBRUARI 1931

DOOR

DR. H. J. C. TENDELOO



H. VEENMAN & ZONEN — WAGENINGEN — 1931

1773031

SECRET

CONFIDENTIAL

CONFIDENTIAL

*Mijne Heeren Curatoren, Professoren, Rectoren en Docenten dezer Hoogeschool, Dames en Heeren Studenten, en gij allen die door Uwe tegenwoordigheid van Uwe belangstelling doet blijken.*

*Zeer geachte toehoorderessen en toehoorders.*

Geroepen om aan de Landbouwhoogeschool onderwijs te geven in de fysieke en kolloidchemie lag het voor mij voor de hand, thans mijn ambt aanvaardend, enkele oogenblikken stil te staan bij een onderwerp, liggend op dit terrein der wetenschap, doch van zoodanigen aard, dat het binnen de belangstelling van een ruimen kring valt.

Het spreekt vanzelf, dat mijn aandacht hierbij gevallen is op de heterogene systemen, tot welke de kolloide systemen als een betrekkelijk afzonderlijk gedeelte behooren. Bij het onderzoek naar de processen, die zich in heterogene systemen afspelen, zij mogen dan ultramicroscopische, microscopische of makroscopische systemen zijn, is een van de meest interessante vragen die naar het gebeuren in het grensvlak der fasen. Daar aan het grensvlak voltrekt zich een groot gedeelte der veranderingen, waarvan wij ten slotte na afloop slechts het eindresultaat te zien krijgen. Ieder, die zich op eenig gebied van het natuurwetenschappelijk onderzoek beweegt, ontmoet vraagstukken, waarbij een goede kennis van heterogene systemen noodzakelijk is. De chemicus, die de heterogene katalyse toepast, de physicus, die de wetmatigheden der adsorptie bestudeert, de landbouwkundige, die den grond onderzoekt, ieder hehoort zijn kennis van de verschijnselen aan grensvlakken te kunnen gebruiken, als hij er in de praktijk voor komt te staan. Gelijk overal, zijn ook hier de vraagstukken, die zich in de praktijk voordoen, dikwijls moeilijker dan die, welke in 't laboratorium geschapen worden. Hier immers tracht men door zooveel mogelijk met gedefinieerde stoffen en onder reproduceerbare, dus betrekkelijk eenvoudige omstandigheden, te werken, resultaten te bereiken. In de praktijk liggen deze dingen geheel anders: hier moet het wetenschappelijk onderzoek worden toegepast op systemen, die dikwijls weinig gedefinieerd zijn, en die zich bevinden onder omstandigheden, die niet meer te reproduceeren zijn. De praktijk is in dit opzicht minder eenvoudig dan het wetenschappelijk onderzoek; de ervaring echter, die men in de praktijk kan krijgen, helpt vaak over moeilijkheden heen, voor men aan een onderzoek toe is. Ondanks een arsenaal van ervaringsmateriaal zou de practicus niets uitrichten, indien hij zich niet een grondige theoretische kennis had eigen gemaakt om aan zijn ervaring beteekenis te geven. Dit is

in 't algemeen gesproken de rechtvaardiging van de beoefening van wetenschap ook daar, waar de praktijk op de eerste plaats staat.

Het klassiek geworden, belangrijke werk van VAN BEMMELN over adsorptie was de arbeid van een bodemkundige. De aandacht der landbouwchemici werd gevestigd op adsorptieverschijnselen als een voorname factor bij het grondonderzoek. In zeer wijden kring is het onderwerp bestudeerd, doch het wezen der adsorptie is eerst veel later begrepen. Voor deze zijde van dit vraagstuk vraag ik eenige oogenblikken Uw aandacht. Ik wilde spreken over enkele moderne, onderzoekingen, die liggen op het terrein der adsorptieverschijnselen en die ons inzicht hebben verdiept over de wijze waarop adsorptie tot stand komt. Parallel hiermee loopt een ander vraagstuk, dat meer specifiek van aard is en dat ons het verband nader brengt, dat er bestaat tusschen de adsorbeerende stof, het adsorbens, en de ge-adsorbeerde stof. Het is n.l. voldoende bekend, dat er groote verschillen bestaan tusschen verschillende adsorbentia voor éézelfde en voor verschillend te adsorbeerende stoffen. Er is dus een wisselwerking, welke is deze en van welken aard is zij?

Uit het omvangrijke materiaal, dat over heterogene systemen, en meer in 't bijzonder over de grenslaag der fasen tot onze beschikking staat, moet ik noodzakelijk een beperkte keuze doen. Ik wil dan allereerst stilstaan bij het grensvlak van vaste stoffen, en begin met U in herinnering te brengen, dat door het Röntgen-onderzoek van kristallen is komen vast te staan, dat deze opgebouwd zijn uit positieve en negatieve ionen. De rangschikking der ionen in het kristal is zeer regelmatig, zoo dat in het inwendige van het kristal de positieve en negatieve ladingen volkomen gecompenseerd zijn. Breekt men het kristal door, dan wordt op de breuk die compensatie verstoord; de op het begrenzend vlak gelegen ionen zijn niet volkomen door tegengestelde ladingen gecompenseerd, en het oppervlak is gekomen in een toestand, waarin het vreemde positieve en negatieve ladingen aan zal trekken en vasthouden. Het oppervlak van een kristal is dus, zoo zouden het kunnen uitdrukken, onverzadigd en er is een oppervlakte-energie. Deze is echter niet homogeen over het oppervlak verdeeld; de ionen vormen punten van maximale energie; ook zijn verschillende kristalvlakken in dit opzicht niet gelijk. Ik behoef niet verder op bijzonderheden in te gaan om te kunnen zeggen, dat het oppervlak van in 't algemeen een vaste stof heterogeen is, en juist deze heterogeniteit interesseert ons, omdat zij het uitgangspunt is voor de inzichten, die men verkregen heeft in het wezen van oppervlakte-verschijnselen als adsorptie, katalyse en, bij kolloid dispersie-systemen, de structuur van de elektrische dubbellaag en de verklaring van uitvlokking en gelatineering.

De grootte van het oppervlak is voor een adsorbeerende stof een belangrijke factor. Hoe poreuser de stof is, hoe meer capillairen er aanwezig zijn, hoe grooter het totaal aanwezige oppervlak wordt. Tallooze werkwijzen zijn er dan ook in den loop der jaren voorgesteld om b.v. een zoo belangrijke stof als adsorptiekool te behandelen om de oppervlakte-ontwikkeling zoo groot mogelijk te maken. Niet alleen de grootte van het oppervlak, maar ook zijn aard is een belangrijke factor. De activiteit van het absorbens wordt beïnvloed door de aanwezigheid van adsorptiecentra, gevormd door atomen van dezelfde stof, maar ook door atomen van een andere stof, die erbij gemengd kan wezen. Men spreekt dan van een promotor- of ook wel van activator-werking; een begrip waarop bij de heterogene katalyse nog wat verder zal worden ingegaan. —

Indien men zich afvraagt, door welke krachten adsorptie tot stand komt, dan moet daarop het antwoord zijn, dat het electricisch veld van ionen, die zich in het oppervlak bevinden, niet volkomen gecompenseerd is, en dat deze ionen de centra zijn, waar andere atomen, ionen of moleculen adsorptief gebonden worden. Nu neemt de veldsterkte zeer snel af met den afstand tot het oppervlak. **MADLUNG** heeft voor een eenvoudig geval, n.l. een kristalvlak van keukenzout, berekend hoe de veldsterkte verandert met den afstand tot het vlak. Stelt men de veldsterkte op een afstand van  $0.7 \cdot 10^{-8}$  cm gelijk 100, dan is deze op een afstand van  $1.4 \cdot 10^{-8}$  cm gelijk 18. Naarmate de afstand grooter wordt, wordt deze daling sterker. Men kan hieruit de gevolgtrekking maken, dat het bezwaarlijk wordt te rekenen met geadsorbeerde lagen, die meerdere moleculen dik zijn. Immers het eerste molecuul, dat geadsorbeerd wordt, wordt zeer sterk gebonden; doch dan is de veldsterkte zooveel kleiner geworden dat, mede door de afscherming van het geadsorbeerde molecuul, een tweede molecuul vrijwel geen kans krijgt om geadsorbeerd te worden. Niettemin zijn experimenteel adsorptielagen van vele moleculen dik gerealiseerd, en het is ook zeer goed mogelijk, een bevredigende verklaring te geven van deze op het eerste gezicht tegenstrijdige uitkomsten.

Tot dusver vestigde ik in hoofdzaak de aandacht op het oppervlak van de adsorbeerende stof, dat is de eene kant; de andere kant is de te adsorbeeren stof, en de wisselwerking van die twee is het wezen der adsorptie.

Op verschillende wijzen heeft men getracht de adsorptie mathematisch af te leiden en te beschrijven.

Het was **FREUNDLICH**, die de eerste formule gaf. Een theoretische basis had zij niet, zij was een empirische formule, die niettemin de verschijnselen vrij goed beschrijft en van uitnemend nut is gebleken te zijn. Onder bepaalde vooronderstellingen is zij echter af te leiden uit een door **GIBBS** afgeleide adsorptie isotherm, doch hierop ga ik niet

verder in. De formule van FREUNDLICH dan geeft aan de geadsorbeerde hoeveelheid als functie van de concentratie van de geadsorbeerde stof als het adsorptieevenwicht zich heeft ingesteld. De formule zegt dus iets omtrent het evenwicht, dat er na adsorptie is. Maar wij willen graag wat meer weten en vragen naar het kinetisch gebeuren; wat gebeurt er b.v. met een gasmolecuul, dat tegen een adsorbens botst? Hierbij doen zich vragen voor als b.v. de volgende: worden alle moleculen eerst aan het oppervlak vastgehouden en verdampen zij daarna weer, is er eenig verband tusschen de richting, waarin zij botsen en weer afgestooten worden, hoelang blijven zij aan het oppervlak? Ik zal niet ingaan op deze vragen, die ons te ver van onze hoofdgedachte zouden afvoeren, doch ik wil alleen vermelden, dat door onderzoekingen in deze richtingen is gebleken, dat er aan adsorbeerende oppervlakken relatief stabiele adsorptiekernen aanwezig zijn. Het is LANGMUIR geweest, die dit op ingenieuze wijze heeft aangetoond; dezelfde onderzoeker, die op zoo menig gebied baanbrekend werk gedaan heeft, heeft ook op het gebied van adsorptie fraaie onderzoekingen verricht. Verder is het ook mogelijk gebleken te berekenen hoelang het gemiddelde verblijf van een kwikatoom bij adsorptie aan een glaswand is; bij 22° C. vindt men hiervoor waarden, die liggen in de groote orde van  $10^{-6}$  seconde.

Op grond van deze voorstelling over het adsorptiemechanisme — n.l. de moleculen, resp. atomen, worden gecondenseerd en verdampen dan weer, en de atomen in het oppervlak vormen de adsorptiecentra — heeft LANGMUIR een formule afgeleid, die experimenteel in zeer vele gevallen bevestigd is geworden. Omgekeerd ligt hierin een verificatie van de vooronderstellingen. Er heerscht aan een oppervlak groote levendigheid, er is een komen en gaan, met een zeer kortstondig verblijf, er is een gedrang.

Over de dikte van de geadsorbeerde laag weten wij ook het een en ander. Langen tijd heeft men getwist of die laag één molecuul of meer moleculen dik is; wij weten nu, dat beide gevallen mogelijk zijn. Het hangt er van af, hoe de aard van het oppervlak is, en wat het oppervlak tegenover zich vindt staan. De voorstelling, dat de geadsorbeerde laag één molecuul dik zou zijn, heeft een oude geschiedenis.

Een der eerste onderzoekers, die op de mogelijkheid van het bestaan van monomoleculaire lagen de aandacht heeft gevestigd, was Lord RAYLEIGH (1899). RAYLEIGH bestudeerde het gedrag van olielaagjes op water; deze olielaagjes verlagen zooals men weet de oppervlaktenspanning van het water. RAYLEIGH vond nu, dat de oppervlaktenspanning van het water sterk daalde, indien het door de olie bedekte oppervlak een zekere waarde bereikt had of kleiner was dan deze z.g. kritische waarde. Hij concludeerde hieruit, dat op dat punt een continue-olielaag van één molecuul dikte was gevormd. Vele onder-

zoekers hebben na hem zich met deze verschijnselen bezig gehouden en methoden uitgewerkt om het oppervlak van de op water tot spreiding gebrachte stof te meten. In 1917 publiceerden HARKINS en LANGMUIR resultaten van hun onderzoekingen over den toestand van moleculen in grenslagen. En ofschoon zij het probleem ieder van een anderen kant aanvatten, komen zij tot éézelfde conclusie. LANGMUIR bestudeert filmen van een in water onoplosbare stof; hij brengt b.v. een oplossing van stearinezuur in aether op water, de aether verdampt en het stearinezuur blijft op het wateroppervlak als een film achter. HARKINS doet metingen van de oppervlaktespanning. Beiden komen zij tot de conclusie, dat de moleculen aan het oppervlak niet zoo maar kris-kras door elkaar liggen, maar dat zij geïntendeerd, gericht zijn. Zoo ligt b.v. een vetzuurmolecuul met de carboxylgroep naar het water toegekeerd, terwijl de koolwaterstofrest van het water is afgekeerd. Brengt men in een oplossing van een vetzuur, b.v. boterzuur, wat adsorptiekool, dan zijn de geadsorbeerde boterzuurmoleculen weer aan het kooloppervlak gericht; ook nu is de carboxylgroep naar het water gericht, de koolwaterstofrest ligt aan de kool. Op verschillende wijzen is deze hypothese in overeenstemming met de feiten gebleken, en de latere zeer uitvoerige onderzoekingen, die ADAM gedaan heeft met een groot aantal organische verbindingen, waaronder reeksen van plaatsingsisomere aromatische verbindingen, hebben tot waardevolle gegevens over de eigenschappen der moleculen geleid. De wijze, waarop een molecuul gericht wordt, hangt dus zoowel af van de eigenschappen van het molecuul als van den aard van het grensvlak, dat ertegenover staat.

Immers de adsorptie is een electricch verschijnsel, en er is geen enkele reden om zich de krachten, die bij adsorptie een rol spelen, van anderen aard te denken dan de krachten in chemische verbindingen. Men kan b.v. zuurstof aan kool adsorbeeren, en dan door verhitting de zuurstof er weer afdrijven. Men vindt dan een deel van de zuurstof als koolmonoxyde en koolzuur terug; dit wijst er op, dat de zuurstof in de geadsorbeerde laag aan de kool gebonden was door krachten van denzelfden aard als die tusschen koolstof en zuurstof in de oxyden.

En ook het feit, dat het zeer veel moeite kost om de laatste sporen van geadsorbeerde stoffen te verwijderen van het adsorptie-middel wijst erop, dat zoo'n eerste laag van moleculen wel sterk gebonden wordt. Maar indien er voor de adsorptie van die eerste laag moleculen reeds zooveel van de beschikbare energie verbruikt wordt, hoe is dan mogelijk, dat nog een tweede of meerdere lagen geadsorbeerd worden? Het antwoord hierop wil ik U geven door U te herinneren aan een experiment, dat door DE BOER is gedaan. De proef werd ge-

daan in een zorgvuldig geëvacueerde glazen ballon, waarin gloeidraden waren gebracht. Op deze gloeidraden was calciumfluoride aangebracht. Door de draden tot gloeien te brengen, destilleerde het calciumfluoride naar den kouden glazen wand waar het condenseerde. In de glazen ballon kon vervolgens jodiumdamp gebracht worden, en door de temperatuur van het jodiumreservoir te varieeren, kon men dus de dampspanning van het jodium veranderen. Men ziet dan, dat het jodium door het calciumfluoridelaagje geadsorbeerd wordt; op de plaats waar het calciumfluoride zich bevindt ziet men een bruine jodiumkleur optreden. Koelt men het jodiumvatje in vloeibare lucht af, dan gaat ook weer de adsorptie terug; de bruine kleur verdwijnt, omdat bij de temperatuur van vloeibare lucht er practisch geen jodium in de ballon aanwezig is.

Nu lukte het ook aan DE BOER om de jodiumconcentratie op het calciumfluoridelaagje te bepalen en hierbij bleek, dat de adsorptie-laag tot 30 moleculen dik kon zijn. De uitkomsten van deze proef zijn ook mathematisch uitgewerkt; een vergelijking werd afgeleid voor de adsorptieisotherm voor gevallen, waarin adsorptie in een meer moleculaire laag optreedt. De eigenschappen van het jodiumatoom spelen een belangrijke rol bij den opbouw van een dergelijke dikke adsorptie-laag, want wat is het geval? Nadat het eerste jodiumatoom door het calciumfluoride is geadsorbeerd, ondervindt een volgend atoom nog maar zeer weinig van de aantrekkende werking van het ionenrooster van het calciumfluoride; de berekeningen van MADELUNG, waarop ik eerder wees, hadden tot een dergelijke conclusie geleid. In dit geadsorbeerde jodiumatoom zijn echter tengevolge van het electrisch veld van het calciumfluoride ionenrooster electrische spanningen opgetreden, waardoor het jodiumatoom zelf een electrisch veld om zich heen opwekt. Het jodiumatoom is gepolariseerd; er is een positieve en een negatieve pool in het jodiumatoom ontstaan; m.a.w. het is een dipool geworden; het positieve calcium ion houdt dan natuurlijk de negatieve pool van de jodiumdipool naar zich toegekeerd, het negatieve fluoorion de positieve pool. Maar nu is de eerste laag jodiumatomen zelf in een toestand gekomen, waarbij het adsorbeeren kan. De polarisatie wordt door de jodiumatomen aan elkander doorgegeven, maar natuurlijk wordt de binding naar buiten toe steeds lossier. Het is als bij een ooploopje; de voorsten zijn zoo in beslag genomen en door anderen omgeven, dat zij zich niet bewegen kunnen; maar hoe verder men naar achteren komt, hoe meer vrijheid van beweging er is, hoe lossier men is.

Nadat wij nu gezien hebben, hoe adsorptie een verschijnsel is van samenwerking tusschen adsorptiemiddel en geadsorbeerde stof, wil ik de aandacht vestigen allereerst op de heterogene katalyse. —

Het is niet mogelijk in een kort bestek een eenigszins bevredigend



overzicht te geven van het enorme materiaal, dat ons over de heterogene katalyse ter beschikking staat. Ook hier moet een beperking gemaakt worden; ik wil daarom niet spreken over het energetische deel, dat voor onze inzichten omtrent de heterogene katalyse van zoo groot belang is, doch uitsluitend even stilstaan bij den katalysator, en ik denk hierbij uitsluitend aan den katalysator voor gasreacties, die in de techniek tot zulke schoone resultaten hebben geleid.

Op het welbekende en groote werk van SABATIER en SENDERENS, dat bijzonder heeft bijgedragen om de heterogene katalyse in het centrum der belangstelling te plaatsen, zijn talloze onderzoekingen gevolgd, die de bewijzen brachten, dat men in staat is reacties uit te voeren in de gasphase met behulp van een groot aantal verschillende elementen of verbindingen als katalysator. Om enkele eenvoudige en zeer bekende gevallen te noemen, herinner ik b.v. aan de dehydrering van primaire en secundaire alcoholen tot aldehyden, respectievelijk ketonen, met behulp van fijn verdeeld koper, nikkel, platina, kobalt; de dehydratering, dus het afsplitsen van water, van alcoholen en de vorming van onverzadigde koolwaterstoffen met behulp van aluminiumoxyde, phosphor- en boorzuuranhydride, watervrije metaalchloriden en het hydreeen b.v. van aromatische verbindingen tot hydroaromatische verbindingen met behulp van nikkel; gemakkelijk is dit aantal uit te breiden met voorbeelden, die bij honderden te vinden zijn in Sabatier's boek: „La catalyse en chimie organique”.

Het eenvoudige feit, dat een chemische reactie door de aanwezigheid van een stof, die oogenschijnlijk niet aan de omzetting deelneemt, versneld, soms ook wel vertraagd wordt, was en is tot op zekere hoogte een raadsel, en vele theorieën zijn in den loop der jaren gegeven. De meest voor de hand liggende verklaring voor de vergrooting der reactiesnelheid is deze, dat tengevolge van de adsorptie aan het katalysatoroppervlak de concentratie der reageerende componenten plaatselijk sterk verhoogd wordt, waardoor een snellere omzetting verklaard was. Deze verklaring blijkt echter onvoldoende; aethylalcohol kan zich, zooals reeds even werd aangeroerd, op twee wijzen ontleden, en wel kan hij omgezet worden in acetaldehyde en waterstof of in aethyleen en water. Bij dezelfde temperatuur geeft koper in hoofdzaak aanleiding tot aldehydevorming, terwijl met aluminiumoxyde de aethyleenvorming overheerscht. Bij beide reacties is de snelheid evenredig aan de alcoholconcentratie, en natuurlijk werkt de adsorptie in deze richting mee. Verschillende katalysatoren zouden dus in de hoeveelheid van beide verbindingen, acetaldehyde en aethyleen, verandering brengen, maar geen invloed hebben op de verhouding van beide, indien alleen een concentratieverhoging van den alcohol het resultaat was van de aanwezigheid van den katalysator. Het tegendeel is het geval: verschillende katalysatoren wij-

zigen juist wel de verhouding acetaldehyde-althyleen. Wij zullen zien, dat juist deze eigenschap van katalysatoren van zoo groot belang is, dat het een probleem van het moderne onderzoek is om na te gaan, hoe door wijziging van den katalysator verandering gebracht kan worden in de samenstelling der reactieproducten. —

Het katalysatoroppervlak, dat is uit het voorgaande duidelijk geworden, bezit specifieke eigenschappen, waardoor het voor bepaalde reacties meer dan voor andere geschikt is. Men zou kunnen spreken van specifiek chemische eigenschappen t.o.v. de stoffen, die reageeren moeten, als men dan bedenkt, dat dit chemische verband er een is van den aard zooals we die bij de adsorptie hebben leeren kennen. Bij groote gelijkenis tusschen chemische binding en adsorptieve binding, is er ook veel verschil; wil men spreken van complexvorming tusschen katalysator en reageerende stof, als tusschentrap voor het tot stand komen eener reactie, dan verschilt een „nikkel—waterstof”-complex van een nikkel-hydride, dus een echte verbinding van nikkel en waterstof, hierin, dat de binding in het nikkel-waterstof-complex niet sterk genoeg is om een nikkelatoom uit het kristalrooster vrij te maken. Heeft men daarentegen nikkel en koolmonoxyde, dan zien we dat dit gas wel sterk genoeg gebonden wordt om een nikkelatoom vrij te maken, waarvan de vorming van de vluchtige verbinding nikkel-carbonyl getuigt.

Wij mogen zeggen, dat het verband tusschen adsorptie en katalyse een belangrijke factor is, doch niet in dien zin, dat een sterk adsorbeerende stof ook een goede katalysator is. Adsorptie en katalyse gaan niet parallel. Voor het tot stand komen van katalyse is behalve adsorptie noodig, dat het geadsorbeerde molecuul geactiveerd wordt, d.w.z. plaatselijk voldoende sterk in beslag genomen wordt door den katalysator om een reactie mogelijk te maken. Hiertoe zijn niet alle plaatsen van den katalysator in even sterke mate geschikt; fraaie experimenteele bewijzen zijn in den loop der jaren naar voren gebracht, die het bestaan van z.g. actieve centra alleszins aannemelijk maken. Het is b.v. voldoende bekend, dat een katalysator gemakkelijk onwerkzaam wordt door de aanwezigheid van geringe sporen van z.g. vergiften. Een platina, een nikkel katalysator wordt spoedig op non-activiteit gebracht door een weinig zwavel-waterstof b.v. Zoo vonden VAVON en HUSSON uit proeven met vergiftigde katalysatoren, bestaande uit platina-zwart, dat de versch-bereide katalysator bij aanwezigheid van waterstof propylketon reduceert; na vergiftiging met zeer weinig zwavelkoolstof lukt dat niet meer, wel nog met piperonaal; bij vergiftiging met meer zwavelkoolstof blijft ook piperonaal onveranderd, doch treedt nog wel reductie van nitrobenzol op. Er zijn dus bij dezen katalysator klaarblijkelijk meerdere niveaus van katalytische activiteit. Aan den anderen kant ziet men, dat in

absorbeerend vermogen een vergiftigde katalysator niet of zeer weinig verschilt van den werkzamen katalysator. Bovendien blijkt, dat de hoeveelheid van de vergiftigende stof vaak veel kleiner is dan noodig is om den katalysator met een monomoleculaire laag te bedekken, terwijl dan de activiteit van den katalysator reeds geheel is opgeheven. Een van de punten, die dan b.v. ook in het „Sixth Report of the Committee on contact Catalysis” als vaststaande is aangenomen, luidt, dat „some catalysts are not uniformly active.” Dit beteekent niet anders, dan dat het oppervlak van een katalysator van punt tot punt anders kan zijn. TAYLOR heeft vooral op dit punt sterk den nadruk gelegd, en hij heeft zich een voorstelling gemaakt over deze actieve centra; zij zouden onder zeer sterke vergrooiting bezien de bergen zijn op het vlakke terrein van het katalysator-oppervlak. De toppen hebben het minste last van de nabije aanwezigheid van andere atomen en zijn het sterkst actief. BALANDIN wil in de actieve centra kristallisatiekiemen zien, die bij het formeeren van den katalysator zijn ontstaan en zelfstandig verder bestaan gebleven zijn. Hoe dit zij: op het oogenblik is nog niet vastgesteld van hoedanigen aard de actieve centra zijn.

Er is echter een ander punt, dat aan den eenen kant ons inzicht in de structuur van het katalysatoroppervlak heeft verdiept en aan de boven ontwikkelde voorstellingen steun verleent, en aan den anderen kant uit technisch oogpunt bezien op fraaie resultaten wijzen kan. Dat is, wat men gewoon is te noemen, de promotor-werking. Men verstaat hieronder de toevoeging van andere stoffen aan een katalysator, teneinde zijn activiteit te verhoogen. Men komt op het niet meer te overzien gebied der gemengde katalysatoren, bestaande uit een innig, geen eenvoudig mechanisch mengsel, van meerdere stoffen.

Door katalysatoren te gebruiken, die uit meer dan een component bestaan, bereikt men verschillende voordeelen. Onder component kan men onder omstandigheden ook verstaan de drager, waarop de eigenlijke katalysator is aangebracht; de drager heeft vaak grooten invloed op het katalytisch effect. Zoo zal men b.v. in staat zijn de eigenlijke katalysator over een grooter oppervlak te verdeelen, door gebruik te maken van een poreusen drager. Men heeft de mogelijkheid om b.v. twee componenten in zoodanige concentratie met elkander te vermengen, dat daardoor een reactie, die op twee wijzen kan verlopen, meer uitsluitend in de eene of de andere richting verloopt. Hierdoor krijgt men een inzicht in het verband tusschen katalysator en gekatalyseerde reactie, met al de vraagstukken, daarmee verbonden en in 't voorgaande genoemd. Op dit gebied zijn er in de laatste jaren fraaie experimenten verricht, waarvan ik er enkele wil memoreeren, die verband houden met groote praktische belangen.

Ik behoef niet nader uiteen te zetten welk een belangrijke factor

de synthetische bereiding van ammoniak en daaruit verkregen producten voor het geheele economische leven van onzen tijd is. De enorme quantiteiten stikstofhoudende meststoffen, die thans noodig zijn om aan de voedselvoorziening der menschheid te kunnen voldoen, zouden vermoedelijk niet beschikbaar zijn, indien niet de synthetisch bereide producten het tekort waren komen aanvullen. Het is niet oninteressant een enkel statistisch gegeven hier in te lichten, waaruit zonder meer blijkt, welk een groote vlucht de industrie in korten tijd genomen heeft: in 1923-1924 was de wereldproductie in zuivere stikstof uitgedrukt rond 1 miljoen ton, waarvan rond 63% synthetisch was verkregen; in 1928-'29 was de wereldproductie meer dan 2 miljoen ton, waarvan rond 75% synthetisch was verkregen. In vijf jaar hebben de synthetische producten den voorsprong dus enorm vergroot; de productie werd  $2\frac{1}{2}$  maal zoo veel. Nog sterker komt dit uit als men hoeveelheden en prijzen vergelijkt van voor 1914 met die na 1918. De synthetische producten hebben de prijzen verlaagd en daardoor een grooter gebruik mogelijk gemaakt. Doch dit laat ik verder rusten. —

Het is de groote en blijvende verdienste van HABER, dat hij het physisch-chemisch onderzoek van de synthetische bereiding van ammoniak uit stikstof en waterstof heeft verwezenlijkt en de gunstigste condities van temperatuur en druk heeft vastgesteld. Dit onderzoek is een voorbeeld hoe goede kennis van de theorie, en aan het experiment en aan de techniek, behoort voor te gaan. Aan den naam van HABER blijft die van BOSCH verbonden, wiens vennootschap, de I. G. Farbenindustrie van thans, er in slaagde de technische moeilijkheden der hooge-druk-synthese te overwinnen, en als eerste met het synthetische product op de markt te komen. Het onderzoek nu van HABER wees uit, dat een goede katalysator noodzakelijk is, omdat de reactie-snelheid niet groot is. Zeer groot is dan ook de arbeid, die verricht is om goede katalysatoren machtig te worden.

In een zeer lezenswaardig artikel deelen MITTASCH en FRANKENBURGER<sup>1)</sup> een en ander mede over de geschiedenis der ammoniak-katalyse, en over den arbeid, door de toenmalige Badische Aniline- und Soda-Fabrik in 1910 begonnen om de eigenschappen van stoffen en mengsels als katalysator te leeren kennen. Daaruit blijkt, dat met name over de samengestelde katalysatoren de Badische eigen en nieuwe wegen heeft ingeslagen, die op ander gebied mede tot belangrijke resultaten hebben geleid, waarbij dan meer speciaal gedacht moet worden aan de bereiding van synthetische benzine en andere producten door hydreeeren van kool, teer en petroleumproducten. Wat nu de ammoniaksynthese betreft, werd gevonden, dat ijzer door

<sup>1)</sup> Z. f. Elektrochem. 35, 920. 1929.

bijvoegen van een reeks andere elementen en verbindingen in hooge mate geactiveerd kon worden, al zijn er ook katalysatoren bij, die geen ijzer bevatten. Ik noem echter in het bijzonder ijzer, omdat door latere onderzoekingen van MITTASCH, KUSS en EMERT onomstootelijk is komen vast te staan, dat bij deze gecompliceerde katalysatoren aan ijzer ook de meer actieve katalytische werking moet worden toegeschreven. Immers zolang geen experimenteële bewijzen geleverd zijn, bestaat twijfel of in een mengsel de hoofdcomponent of de promotor de eigenlijke katalytische werking uitoefent. Uit de resultaten van de reactie is dit niet altijd op te maken; men moet dan het onderzoek aan de katalysatormassa zelve uitvoeren, hetgeen b.v. geschieden kan door Röntgen-analyse van de katalysator-massa. Een dergelijk onderzoek is gedaan door BRILL en MARK, en door EISENHUT en KAUPP. Een belangrijke klasse van ammoniak-katalysatoren bevat, naast verschillende andere verbindingen, steeds complexe ijzercyaniden. Onderzoekt men de veranderingen, die een dergelijke katalysator ondergaat vanaf het oogenblik, dat hij in gebruik genomen wordt, totdat hij de grootste activiteit vertoont, dan blijkt door Röntgenografisch onderzoek, dat steeds meer metallisch ijzer gevormd wordt. Naarmate dit ontstaat, wordt de activiteit van den katalysator groter, waaruit men concludeeren kan, dat aan de ijzerkernen de eigenlijke katalytische werking zich afspeelt.

MITTASCH, KUSS en EMERT hebben de ontleding van ammoniak aan deze complexe ijzercyaniden nagegaan. Ook uit dit onderzoek bleek, dat de ijzercyaniden door het stikstof-waterstof-mengsel ontleed worden, onder vorming van metallisch ijzer, geheel in overeenstemming met het vorige onderzoek. Later is dit nog op andere wijze bevestigd, n.l. door ontleding van ammoniak aan ijzer bevattende contacten. Uit ijzercarbonyl werd zeer zuiver ijzer gemaakt, dat met kalium- en aluminium-oxyde werd geactiveerd. Bij de laagste temperatuur, waarbij ammoniakontleding optrad, werd waterstof ontwikkeld, bij wat hooger temperatuur ook wat stikstof, totdat bij nog hogere temperatuur ten slotte stikstof en waterstof in de theoretische verhouding van 1 : 3 ontwikkeld werd. Hieruit blijkt dus, dat in eerste instantie een ijzernitride werd gevormd, dat daarna ontleed werd. Ging men niet van zuiver ijzer, maar van ijzerverbindingen uit, dan bleek telkens weer, dat eerst dan een katalytische werking werd gevonden, als er metallisch ijzer aanwezig was. Men heeft hier dus te doen met een specifiek invloed van het ijzer en ziet, dat de reactie gelocaliseerd is op bepaalde plaatsen van den katalysator.

BURK heeft een dergelijk onderzoek gedaan. Hij concludeerde uit zekere proeven, dat wolfram op stikstof, en platina op waterstof, selectief adsorbeerend werkte, en kon op grond van zijn beschouwing van de katalytische werking verwachten, dat een mengsel van wol-

fraam en platina meer katalytisch zou werken op de ontleding van ammoniak, dan elk der metalen voor zich alleen. Inderdaad bleek dit ook zoo te zijn.

Een ander technisch belangrijk katalytisch procedé is de synthese van methylalcohol of methanol uit kooloxyde en waterstof. Ook deze reactie geschiedt onder hoogen druk en temperatuur, en ook hier zijn tallooze katalysatoren bekend en beschreven. Ik wil mij echter bepalen tot één klasse van katalysatoren, n.l. die bestaan uit koper- en zinkoxyde, een katalysator die uitvoerig door den Amerikaan FROLICH en medewerkers is onderzocht.

Methanoldamp over een katalysator geleid kan op verschillende wijze ontleed worden, b.v. in methaan, koolzuur en waterstof, of in kooloxyde en waterstof, of in formaldehyde en waterstof of in methylformiaat en waterstof. Bepalend voor de activiteit van een methanol-katalysator is nu de ontleding in kooloxyde en waterstof. Zij maakten nu een aantal katalysatoren, die in wisselende hoeveelheden zinkoxyde en koperoxyde bevatten, en vonden dat bij circa 65 mol.-percent zinkoxyde en 35 koperoxyde een maximale ontleding in kooloxyde en waterstof plaats vond. Dit maximum verloopt vrij vlak naar hooger zinkoxyde-concentraties, zeer snel naar den kant van lagere concentratie. Dit wees dus reeds in de richting van een preferente werking van zinkoxyde. Zij zijn toen verder gegaan en hebben met Röntgenstralen het kristalrooster der katalysatoren onderzocht. Het bleek, dat de grootte van de z.g. elementaire cel, zoowel van zinkoxyde als van koperoxyde, veranderde met de verhouding, waarin beide gemengd waren. Voor koper werd een maximum gevonden bij circa 40 mol.-percenten, voor zinkoxyde een maximum bij circa 99 mol.-percenten. Uit de resultaten van hun onderzoek blijkt, dat er een verband bestaat tusschen katalysator en activiteit, tusschen de afmetingen der elementaire cel en de gevormde producten. Een quantatief verband werd nog niet gevonden, doch uit den aard van het onderzoek blijkt wel, dat in deze richting nog waardevolle gegevens gevonden kunnen worden. Het terrein is nog te weinig onderzocht en wacht op verdere bewerking.

Zooals bekend, kan men uit kooloxyde en waterstof een groot aantal verbindingen synthetiseeren, en de specifieke invloed van bepaalde katalysatoren blijkt hieruit, dat men met nikkel methaan, met zinkoxyde en een promotor methanol, met ijzer en een alkaliverbinding als promotor, hoogere alifatische alcoholen, koolwaterstoffen en ketonen verkrijgt.

Welke verschijnselen ontmoet men nu in de kolloïdchemie, die er op wijzen, dat bepaalde plaatsen op het deeltje, de micelle, bevoorrecht zijn boven andere?

Een voorbeeld van dien aard, dat reeds langeren tijd bekend is,

ligt op het terrein van de photographie. Een groot probleem is het ontstaan van het z.g. latente beeld. Wat gebeurt er in de zilveremulsie bij de belichting? Het beeld is nog onzichtbaar, latent, en wordt door de ontwikkeling te voorschijn gebracht.

Men heeft verschillende theorieën ontwikkeld, die ik voor het oogenblik niet nader behoef te bespreken om te komen tot de theorie, die door SVEDBERG is aangegeven en experimenteel zeer waarschijnlijk is gemaakt door onderzoekingen verricht in het research laboratorium der Kodak Co.; zij komt op het volgende neer:

Een nauwkeurig microscopisch onderzoek van belichte, zeer homogeen bereide emulsies leerde, dat niet alle korrels even gevoelig waren. D.w.z. er waren korrels, die na ontwikkeling meer gezwart waren dan andere, terwijl er ook korrels waren, die in 't geheel niet gezwart waren. Klaarblijkelijk zijn dus alle korrels niet in dezelfde conditie geweest en de vraag was nu, in welk opzicht er dan verschil bestond. SVEDBERG sprak de hypothese uit, dat er gevoelige plekken, sensitive spots, aanwezig zouden zijn. Een gevoelige plek op een korrel zou de oorzaak zijn, dat een korrel na belichting en ontwikkeling gezwart bleek te zijn; bij afwezigheid zou er geen zwarting optreden, tenzij de bijzondere omstandigheid optrad, dat een dergelijke korrel, eenvoudig gesproken, onder invloed zou komen van een er naast gelegen korrel, die wel in 't bezit van een gevoelige plek is. Deze hypothese is later door hem en anderen experimenteel bevestigd. De volgende vraag is dan: waardoor is die plek gevoelig? Het lag voor de hand in de eerste plaats te denken aan een adsorptieverschijnsel; en ook dit bleek juist. Een gevoelige plek wordt gekenmerkt door de aanwezigheid daar ter plaatse van een zilverkerntje. Daar ter plaatse begint dus bij de belichting het fotografisch proces. Door zorgvuldig onderzoek hebben SHEPPARD en medewerkers deze theorie volledig uitgewerkt en de experimenten volkomen in overeenstemming daarmee gevonden. Eenige jaren geleden slaagde SHEPPARD erin, uit gelatine een stof af te scheiden, n.l. een isothiocyanaat, die gemakkelijk in een sensibilisator voor emulsies over kon gaan, n.l. in een thiocarbamide. Dit onderzoek heeft vele duistere punten in de practische ervaring van photographische emulsies eenigszins verklaard; wij zijn er echter nog verre van een volkomen inzicht in deze processen te hebben. De sensibilisator zou plaatselijk den korrel gevoelig maken. Het photo-effect wordt dan in eerste instantie gelocaliseerd, en breidt zich vervolgens door den heelen korrel uit.

Eenige jaren geleden heeft BUNGENBERG DE JONG de hypothese uitgesproken, dat de solvatatie van lyophile soldeeltjes niet homogeen over het oppervlak zou zijn uitgebreid. De homogene solvatatie is wel het eenvoudigste beeld, dat men zich maken kan, doch men komt hiermee bij het doordenken der verschijnselen spoedig in

moeilijkheden. Bepalen wij onze gedachte tot waterige solen, dan weten wij, dat bij een hydrophiel sol lading en hydratatie als stabiliteitsfactoren optreden. Door aan het sol een electrolyt toe te voegen neemt men in hoofdzaak de lading weg, waarbij echter ook de hydratatie in de meeste gevallen een wijziging ondergaat; het sol blijft echter stabiel. Aan den anderen kant kan men ook in hoofdzaak de hydratatie wegnemen, waarbij in vele gevallen het sol stabiel blijft tengevolge van de lading der deeltjes. Worden echter beide stabiliteitsfactoren opgeheven, dan vlokt het sol uit. Bezwaren gaan zich voordoen, wanneer men de gelatineering gaat bekijken. Oude onderzoekingen van BACHMANN wezen er reeds op, dat men in de gelatineering een uitvlokkingsverschijnsel moet zien. Men weet, dat gelen van b.v. gelatine, gemakkelijk weer in den soltoestand kunnen worden gebracht. Hoe kan men nu de gelatineering en den terugkeer in soltoestand van iso-electrische gelatine, waar geen lading, doch alleen hydratatie is, in het licht van het voorgaande begrijpen? Indien de hydratatie homogeen is uitgebreid en als stabiliteitsfactor aanwezig is, hoe kan de gelatineering als uitvlokkingsverschijnsel, die bovendien reversibel is, begrepen worden?

Dit kan men zonder bezwaar, als men met BUNGENBERG DE JONG aanneemt, dat de hydratatie op bepaalde plaatsen van de deeltjes is gelocaliseerd. Op een deeltje zijn dan gedeelten waar geen hydratatie, andere waar deze wel is. Men kan zich dus voorstellen, dat het deeltje zich ten deele hydrophoob, en ten deele hydrophiel gedraagt. Als bovendien bij 't iso-electrisch punt de gelatine geen lading heeft, is het hydrophobe deel in een toestand, waarbij het zal uitvlokken. Wordt door temperatuurverlaging de Brownsche beweging geringer, dan is er gelegenheid, dat de deeltjes tot grootere aggregaten conglomereeren en in dit geval gelatineeren. Men kan zich voorstellen, dat in het gel vacuolen ontstaan met een hydrophielen wand; door deze wijze van beschouwen worden verschillende eigenschappen van gelen goed verklaard.

VAN DER HOEVE heeft uitvoerig de verstijfseling van aardappelmeel onderzocht en het is gebleken, dat hij de verschijnselen, die zich hierbij voordoen, zeer goed verklaren kon, door aan te nemen, dat ook hier de micelle hydrophobe en hydrophiele eigenschappen naast elkander, dus gelocaliseerd bezit.

De hypothese uitgesproken voor hydrophile deeltjes is door KRUYT uitgebreid tot hydrophobe deeltjes, doch nu uitsluitend voor de localisatie van de lading der deeltjes. Bij deeltjes, bestaande uit een niet geleidende stof, is de lading dan niet regelmatig over het geheele oppervlak verdeeld, en het bleek nu, dat deze voorstelling zekere onregelmatigheden begrijpelijk maakt, die optreden in het gebied der langzame uitvlokkingsverschijnselen van hydrophobe solen. Een sol als



quasi-stabiel systeem is voortdurend bezig uit te vlokken; door geringe hoeveelheden electrolyt toe te voegen wordt dit proces versneld en komt men in een gebied, waar metingen mogelijk worden. Verhoogt men de electrolytconcentratie, dan komt men in het gebied van snelle uitvlokking, waar eveneens metingen te doen zijn. De kinetika van deze laatstgenoemde snelle coagulatie is behandeld door VON SMOLUCHOWSKI, die haar ook in een formule uitdrukte. Verschillende onderzoekingen hebben bewezen, dat deze formule juist is. Voor de eerstgenoemde langzame coagulatie kwam men echter in moeilijkheden. VON SMOLUCHOWSKI meende, dat de formule even zoo goed de verschijnselen der langzame coagulatie zou weergeven, alleen met dit verschil, dat de constante in de formule door een andere vervangen moest worden, waarin nu de kleefkans in rekening gebracht was. Immers bij de snelle coagulatie leidt elke botsing van twee deeltjes tot een samenkleven, bij de langzame coagulatie echter niet. Onderzoekingen wezen evenwel uit, dat het verschijnsel niet zoo eenvoudig was, en dat er van een constante coagulatiesnelheid in het geheel geen sprake was, zooals wel het geval is bij de snelle coagulatie. Neemt men nu echter aan, dat op het oppervlak der deeltjes de lading niet homogeen is verdeeld, dan is gemakkelijk in te zien, dat een conglomeraat van twee deeltjes zich wat de ladingsverdeling betreft, geheel anders zal moeten gedragen, als een enkelvoudig deeltje, en dat de coagulatiesnelheid dus veranderen moet naarmate de enkelvoudige deeltjes, eerst aanwezig, grootere aggregaten vormen. Het zal zeer de moeite waard zijn verdere onderzoekingen in het licht van deze voorstellingen te bezien en nieuwe eraan te ontleenen.

Is men er in 't algemeen licht toe geneigd grensvlakken in hun totaliteit te beschouwen als de plaats waar de verschijnselen zich voltrekken, de nadere bestudeering wijst er op, dat dit zeer onvolkomen is, omdat men integendeel denken moet aan locale verschijnselen.

Het belang van deze beschouwingen voor problemen van bodemkundigen aard is onlangs door WIEGNER naar voren gebracht.

Wij staan echter nog pas aan het begin, en vele terreinen liggen nog open om deze inzichten aan het experiment te toetsen.

Mijne Heeren Curatoren dezer Hoogeschool.

Het getuigt van Uw ruimen blik op de belangen der Landbouwhoogeschool, dat Uw college de mogelijkheid geopend heeft een lectoraat in de physische en kolloïdchemie in te stellen. Gij hebt de wenschelijkheid gevoeld, dat methoden van physisch-chemisch en kolloïd-chemisch onderzoek worden toegepast op vraagstukken van

landbouwkundigen aard, een wenschelijkheid, die gij tot uitdrukking bracht door de positie te scheppen, die ik aanvaard heb.

Gij zijt nog verder gegaan en hebt het mogelijk gemaakt, dat in de nabije toekomst een speciaal daartoe bestemd laboratorium in gebruik genomen zal worden. Uw zorg voor deze Hoogeschool doet mij hopen, dat ik bij de inrichting van dit laboratorium niet tevergeefs om Uw steun zal behoeven te vragen.

Het stemt mij dankbaar, dat gij mij wel de eer hebt waardig gekeurd, dit ambt te bekleeden.

Ik ben mij ten volle bewust van de verantwoordelijkheid, die ik op mij nam, doch gij wilt van mij de verzekering aanvaarden, dat ik mijn beste krachten zal wijden aan de taak, die mij is toevertrouwd.

Mijne Heeren Professoren, Lectoren en Docenten aan deze Hoogeschool.

De terugkomst in de kringen van ons Hooger Onderwijs beleeft ik als een groot voorrecht. Ik hoop in omgang en samenwerking met U, veel van U te leeren om nuttig werk te kunnen doen in verband met vraagstukken, die in het middelpunt van ons aller belangstelling staan. De hartelijke wijze, waarop ik door diegenen onder U, met wie ik reeds in aanraking mocht komen, ontvangen werd, geeft mij het vertrouwen, dat ik niet alleen op het gebied onzer werkzaamheden, doch ook in het gewone leven een beroep zal mogen doen op Uwe door mij hooggewaardeerde sympathie.

Hooggeleerde Olivier.

Ik kan zeggen, dat gij de eerste waart uit den kring der Landbouwhoogeschool, met wien ik in aanraking kwam. Dat is echter lang geleden, in een tijd toen ik nog niet aan de mogelijkheid dacht, dat ik met U zou samenwerken voor de belangen dezer hoogeschool. Nu dit een feit is geworden en wij in de toekomst zelfs overburen zullen zijn, wil ik U vragen mij Uw steun en ervaring niet te onthouden.

Ik geef U de verzekering, dat ik zal streven, mij de samenwerking met U waardig te maken.

Hooggeleerde Kruyt, hooggeachte leermeester.

Het is mij een genoegen, dat ik vanaf deze plaats ook tot U het woord mag richten. In de eerste plaats een woord van hartelijken dank voor wat ik aan U verschuldigd ben. Aanvankelijk waart gij de leermeester, die leiding gaf aan het onderzoek, dat in Uw laboratorium werd uitgevoerd. Gij deedt dat op een wijze, die wij hoogelijk waardeerden en roemden, en gij verbondt U niet alleen aan ons wetenschappelijk werk, maar ook aan onze persoon. Steeds meer werd

gij, zoo mag ik het misschien zeggen, de oudere vriend met de ruime belangstelling en steun.

Ik acht het mij een eer Uw leerling te zijn, daarnaast een blijvend voorrecht, U als assistent te hebben terzijde gestaan.

Geroepen om een onderdeel der wetenschap te doceeren, dat ons beider belangstelling heeft, spreek ik de hoop uit, dat ik mij U waardig mag betoonen en dat er gelegenheid zal zijn, dat wij in de toekomst nog vaak mogen samenwerken. U houde zich overtuigd, dat ik hieraan mijn beste krachten zal geven.

Dames en Heeren Studenten aan deze Hoogeschool.

Ik hoop, dat gij in mij niet zult zien iemand, die Uw studie komt verzwaren. Integendeel. Mij is er meer aan gelegen bij te mogen dragen het inzicht in de verschijnselen, die wij gemeenschappelijk bestudeeren, te verdiepen; het weten, dat niettemin onmisbaar is, komt dan, ik durf niet zeggen vanzelf, maar dan toch gemakkelijker. Gij zult mij steeds bereid vinden U den weg te wijzen en behulpzaam te zijn op het terrein, dat Uwe belangstelling heeft, en ik hoop, dat Gij U door niets zult laten weerhouden om met Uw vragen en moeilijkheden tot mij te komen.

Lieve Moeder.

Mijn innerlijke vreugde over dezen dag en de toekomst kent U. Aan U komt de eer toe, dat Gij met terzijdestelling van zeer veel, alles deedt om ons ter bestemming te brengen. Wil daarvoor ook van deze plaats mijn dank aanvaarden.

Ik heb gezegd.

