



УДК 691.57:621.357:621.182.113

Применение гальваношламов в составе пигментной части одноупаковочной силикатной краски

А.В. Калинин, П.Б. Разговоров, А.А. Игнатъев

Алексей Вячеславович Калинин

Кафедра гидротехнического и дорожного строительства, Ярославский государственный технический университет, Ярославль, Российская Федерация

E-mail: kalininav@ystu.ru

Павел Борисович Разговоров

Управление организации научно-исследовательской и интеллектуальной деятельности, Ярославский государственный технический университет, Ярославль, Российская Федерация

E-mail: razgovorovpb@ystu.ru

Алексей Александрович Игнатъев

Кафедра гидротехнического и дорожного строительства, Ярославский государственный технический университет, Ярославль, Российская Федерация

E-mail: ignatyevaa@ystu.ru



Показаны преимущества использования силикатных красок как экологически чистых лакокрасочных материалов для современного строительства при обработке фасадов, интерьеров зданий и сооружений. Подчеркивается актуальность разработки одноупаковочных составов, в особенности с включением натриевого жидкого стекла в качестве связующего вещества. Выявлена возможность замены традиционных минеральных компонентов в составе пигментной части на тонкодисперсные отходы – гальваношламы. Это позволяет производить утилизацию шламов и снизить стоимость производства силикатной краски.

Ключевые слова: силикатные краски, мочевины, гальваношламы, физико-химические и эксплуатационные свойства

Для цитирования:

Калинин А.В., Разговоров П.Б., Игнатьев А.А. Применение гальваношламов в составе пигментной части одноупаковочной силикатной краски. *Умные композиты в строительстве*. 2021. Т. 2. №. 4. С. 62-73 URL: http://comincon.ru/index.php/tor/V2N4_2021

DOI: 10.52957/27821919_2021_4_62



Application of electroplating slams in the pigment part of a single-pack silicate paint

A.V. Kalinin, P.B. Razgovorov, A.A. Ignatyev

Alexey V. Kalinin

Hydraulic and Road Engineering Department, Yaroslavl State Technical University, Yaroslavl, Russia

E-mail: kalininav@ystu.ru

Pavel B. Razgovorov

Department of Organization of Research and Intellectual Activity, Yaroslavl State Technical University,
Yaroslavl, Russia

E-mail: razgovorovpb@ystu.ru

Alexey A. Ignatyev

Hydraulic and Road Engineering Department, Yaroslavl State Technical University, Yaroslavl, Russia

E-mail: ignatyevaa@ystu.ru



The advantages of using silicate paints as environmentally friendly paint and varnish materials for modern construction in the processing of facades, interiors of buildings and structures is shown. The urgency of the development of single-pack formulations, especially with the inclusion of sodium liquid glass as a binder, is emphasized. The possibility of replacing the traditional mineral components in the composition of the pigment part with finely dispersed waste – electroplating slams has been revealed. This allows the disposal of slams and reduces the cost of production of silicate paint.

Key words: silicate paints, urea, electroplating slams, physico-chemical and operational properties

For citation:

Kalinin A.V., Razgovorov P.B., Ignatyev A.A. Application of electroplating slams in the pigment part of a single-pack silicate paint. *Smart Composite in Construction*. 2021. Vol. 2. No 4. P. 62-73 URL: http://comincon.ru/index.php/tor/V2N4_2021

DOI: 10.52957/27821919_2021_4_62



ВВЕДЕНИЕ

Применяемые в России и за рубежом силикатные краски характеризуются негорючестью, нетоксичностью, дешевизной сырья, технологичностью и наличием реальной промышленной базы. Их состав и строение веществ в основе, объясняющие причину активного использования для отделки фасадов зданий, описаны в [1]. Такие композиции имеют высокий показатель адгезии к бетону, асбоцементу, кирпичу и эффективно используются в строительстве для защиты минеральных и металлических поверхностей [2, 3]. Они предохраняют стены от увлажнения, а поверхность можно мыть, что имеет большое значение при окрашивании жилых домов [4].

В составе силикатных красок в качестве щелочного раствора применяют калиевое или натриевое, а в отдельных случаях – литиевое жидкое стекло. Пигментирующая часть, как правило, включает вещества минерального происхождения (мел, тальк, оксид цинка или борат кальция), которые образуют суспензию. Органические растворители в составе отсутствуют. При этом материал поверхности сцепляется с пленкой с высокой степенью надежности, определяемой родом материала, сроком твердения и условиями окружающей среды.

В СССР силикатные краски появились в 1930-х годах, но из-за недостатка исходного сырья для производства они не получили широкого распространения. Во второй половине XX столетия вновь был поднят актуальный вопрос о применении силикатных красок в строительстве. При этом проведенные исследования [5] показали, что при соблюдении оптимальной технологии приготовления, нанесения и сушки краски атмосферостойкость композиции, включающей борат кальция (марка Б), не уступает таковой с включением оксида цинка (марка А), что позволяет применять ее для наружных работ.

На протяжении долгого времени для силикатных красок применяли калиевое жидкое стекло. Однако, в связи с дефицитностью поташа исследования красок, проводили, в основном, на основе силиката натрия. Следует учитывать, что применение последнего сдерживает недостаточная водоустойчивость получаемых покрытий и необходимость введения дополнительных компонентов. Также, в связи с особенностями процесса твердения силикатных красок, возникают затруднения при их использовании потребителем в связи с тем, что без специальных добавок они характеризуются невысокой жизнеспособностью и выпускаются двухупаковочными [6] (отдельно жидкое стекло и отдельно сухая пигментная часть). Это сказывается на повышении трудо- и энергозатрат при смешении компонентов на строительной площадке.

Проблема получения жизнеспособных и стабильных при продолжительном хранении силикатных красок была решена в 1980-е годы на германских предприятиях [7]. Были разработаны одноупаковочные силикатные краски на основе калиевого жидкого стекла, модифицированного полиакрилатами, со сроком хранения до 6 месяцев с даты изготовления. В начале 1990-х годов были проведены соответствующие исследования в Ивановской государственной химико-технологической академии (Российская Федерация) с целью получения более дешевой одноупаковочной водостойкой краски на основе недефицитного натриевого жидкого стекла. Задача была решена путем модификации натриевого жидкого стекла мочевиной [8]. Кроме того, была предложена возможность удешевления состава за счет использования в сухой пигментной части отходов промышленных производств.

В настоящее время одноупаковочные силикатные краски производят многие зарубежные компании, в частности, ALCRO-BECKERS AB и VIVACOLOR (Швеция), ALLIGATOR и



CARAPOL (Германия), JUB (Словения), TIKKURILA (Финляндия) и др. Такие краски рекомендованы для использования в строительстве в странах Союза Независимых Государств [9] и Российской Федерации [10, 11].

В Институте общей и неорганической химии Национальной Академии наук Беларуси с 2009 г. проводятся работы по разработке составов защитных и упрочняющих материалов полифункционального назначения. В результате проведения исследований была разработана однокомпонентная силикатная краска, представляющая собой композицию на основе калиевого жидкого стекла (ГОСТ 18958-73). В нее входят неактивные щелочестойкие наполнители и пигмент (диоксид титана), вододисперсный полимер и вспомогательные вещества (диспергатор, загуститель, пеногаситель), устойчивые в области высоких pH, а также специальные добавки, способствующие двойному окремнению силикатных покрытий и придающие поверхности гидрофобность («эффект лотоса»). Краска обеспечивает диффузию водяного пара, водоотталкивающие свойства покрытий, демонстрирует хорошие физико-механические свойства и оптимально защищает окрашиваемую поверхность от влаги [9].

Ознакомление с результатами ранее проведенных работ показало, что проблема разработки одноупаковочных силикатных красок по-прежнему актуальна, особенно с использованием натриевого жидкого стекла. Анализ [8] показал, что такие материалы могут быть получены в производственных условиях путем реализации несложного технологического цикла. Характерно, что, помимо традиционных минеральных компонентов, допускается использование тонкодисперсных отходов промышленности.

Известным приемом защиты поверхности изделий от коррозии является гальваническое нанесение пленок одних металлов на другие [3, 12]. В результате образуются гальваношламы – токсичные отходы машиностроительной промышленности, имеющие II–III класс опасности для экосистем. Обычно они представляют собой порошковую дисперсию бурого-коричневого цвета, содержащую тяжелые металлы – цинк, никель, хром, медь, олово, свинец [13].

Переработанные в порошок гальваношламы, содержащие ионы тяжелых металлов, можно считать аналогами полиметаллических руд [14]. Накопленный за долгие годы объем материала в условиях истощения запасов природных ископаемых является источником ценного сырья для различных отраслей промышленности. При этом решаются две задачи – утилизация отхода, повышающего напряженность экосистемы, и максимальное использование материала в производственном цикле, что является целесообразным с экономической точки зрения.

На сегодняшний день разработаны различные способы утилизации и обезвреживания гальваношламов. В частности, они используются в промышленном производстве удобрений, абразивных материалов, сорбентов, катализаторов, антипиренов, пигментов, цемента, а также строительных материалов – керамики, керамзита, кирпича, бетона. В [13] указывается на возможность применения измельченного гальваношлама в качестве пигмента в составе различных окрасочных композиций.

Целью настоящей работы является изучение принципиальной возможности применения гальваношламов, получаемых на машиностроительных предприятиях Ярославской области, в пигментном составе одноупаковочных силикатных красок с включением модификатора мочевины, а также физико-химических свойств покрытий на основе разработанных составов.



ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для исследования возможности применения переработанного гальваношлама в качестве пигмента были изготовлены образцы одноупаковочных силикатных красок, состав которых включает традиционные пигменты – титановые и цинковые белила, а также измельченные гальваношламы Ярославского завода дизельной аппаратуры и Тутаевского моторного завода (в виде порошка красно-бурого цвета) (табл. 1).

Табл. 1. Опытные составы силикатных красок

Table 1. Experimental compositions of silicate paints

Наименование компонентов	№ состава			
	1	2	3	4
Модифицированное мочевиной натриевое жидкое стекло плотностью 1.40 г·см ⁻³ , г	36.6	36.6	36.6	36.6
Вода, г	14.8	14.8	14.8	14.8
Сухая пигментная часть, г, в том числе:	36.6	36.6	36.6	36.6
– мел порошок, г	25.6	25.6	25.6	25.6
– тальк порошок, г	5.5	5.5	5.5	5.5
– титановые белила порошковые, г	5.5	–	–	–
– цинковые белила	–	5.5	–	–
– гальваношлам Ярославского завода дизельной аппаратуры	–	–	5.5	–
– гальваношлам Тутаевского моторного завода	–	–	–	5.5
Латекс бутадиен-стирольный, г	12	12	12	12
Всего, г	100.0	100.0	100.0	100.0

Для полученных образцов силикатных красок были проведены испытания по следующим характеристикам, дающим основное представление об их физико-химических и эксплуатационных свойствах.

Укрывистость – способность материала делать невидимым цвет или цветовые различия окрашиваемой поверхности (ГОСТ 8784-75). Укрывистость показывает, сколько сухой пленки испытуемого материала необходимо, чтобы укрыть один квадратный метр непигментирующей контрастной поверхности, и характеризует расход краски на единицу площади окрашиваемой поверхности.

Измерение кроющей способности краски проведено методом определения укрывистости на черно-белой подложке по ГОСТ 8784-75, раздел 3.

На стеклянные пластинки размером 120x90x1.4 мм, предварительно протертые тканью, смоченной ацетоном, и насухо протертые чистой и сухой тканью, взвешенные с точностью до второго десятичного знака, наносили один-два слоя лакокрасочного материала. Стеклопластину с красочным материалом клали на шахматную доску и наблюдали при рассеянном дневном свете, просвечивают ли белые и черные поля. Если поля просвечивали, наносили на



пластинку последовательно новые слои материала до тех пор, пока полностью не исчезала разница между белыми и черными полями. После полного укрытия стеклянную пластинку взвешивали с точностью до второго десятичного знака, сушили и снова взвешивали. Перед взвешиванием и высушиванием удаляли потеки красочного материала с обратной стороны и с ребер пластинки. Каждый раз перед нанесением нового слоя лакокрасочный материал перемешивали.

Расчет показателя укрывистости проводился для масляных красок малярной консистенции по ГОСТ 8784-75, раздел 3. Укрывистость высушенной пленки вычисляли как отношение массы краски, нанесенной на пластинку, к площади окрашивания.

Смываемость (прочность при смывании пленки краски) – выражается в количестве покрытия, смытого с поверхности заданным количеством воды при трении щеткой. Характеризует способность лакокрасочного покрытия противостоять атмосферным и механическим воздействиям.

Для определения смываемости на стеклянные пластинки размером 120x90x1.4 мм, предварительно протертые тканью, смоченной ацетоном, насухо протертые чистой и сухой тканью, с помощью щетинной кисти нанесли готовую силикатную краску. Отверждение пленки происходило в стеклянном шкафу при комнатной температуре в течение 24 ч. Стеклянные пластинки с отвержденным покрытием взвешивали на аналитических весах. Затем в течение 30 с под струей воды с температурой (293 ± 2) К терли покрытие круговыми движениями зубной щеткой при нагрузке (20 ± 2) Н. Затем пластинки с покрытиями высушивали в стеклянном шкафу при комнатной температуре в течение суток и взвешивали на аналитических весах. Смываемость краски определяли как отношение разницы в массе пластинки с покрытием до испытания и после к первоначальной площади покрытия.

Адгезия – отвечает за качество сцепления лакокрасочной плёнки с поверхностью.

Адгезию оценивали по методу решетчатого надреза. На однослойное покрытие по линейке лезвием наносили на расстоянии 1 мм пять параллельных и перпендикулярных надрезов (в виде решетки). Сверху наклеивали отрезок изоленды и резко отрывали. Результат оценки связывали с количеством отслоенных квадратов в баллах: 1 балл – отсутствие отслоившихся фрагментов; 2 балла – отслоение 5%; 3 балла – отслоение 35%; 4 балла – отслоение более 35%.

Водоустойчивость – способность покрытия максимально противостоять разрушающему действию воды при длительной эксплуатации окрашенных поверхностей.

Для определения водоустойчивости готовую силикатную краску наносили при помощи щетинной кисти на стеклянные пластинки размером 120x90x1.4 мм, предварительно протертые тканью, смоченной ацетоном, и насухо протертые чистой и сухой тканью. Отверждение пленки осуществляли в течение суток в стеклянном шкафу при комнатной температуре. Пластинку с покрытием погружали на 2/3 ее длины в стеклянный стакан, наполненный дистиллированной водой, и выдерживали в воде 24 ч. Перед осмотром покрытие высушивали 1-2 ч при комнатной температуре. Трением пальцев руки о поверхность сухого покрытия судили о степени его вымелывания.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Для каждого состава проводили отдельные испытания. Полученные результаты приведены в таблице 2.

**Табл. 2.** Физико-химические и эксплуатационные свойства силикатных красок**Table 2.** Physico-chemical and operational properties of silicate paints

Показатель	№ состава			
	1	2	3	4
Укрывистость, г·м ⁻²	321	338	181	330
Смываемость, г·м ⁻²	21.3	14.8	9.1	6.9
Адгезия, баллы	1	1	2	2
Стойкость при статическом воздействии воды	вымеливает	вымеливает	вымеливает слабо	вымеливает

На практике ГОСТ 18958-73 не предъявляет специальных требований к физико-химическим и эксплуатационным свойствам силикатных красок. Исходя из требований нормативных документов к водно-дисперсионным фасадным краскам, рекомендуемая укрывистость для них – 150–200 г/м², смываемость – 2–4 г/м², адгезия – 1 балл (покрытие не отслаивается). Изученные аналоги силикатных красок, рекомендованные для окрашивания фасадов и схожие по составу, имеют следующие физико-химические и эксплуатационные свойства: укрывистость – 200–250 г/м²; устойчивость к статическому действию воды – без изменений; адгезия – 1 балл.

Краски с включением гальваношамов в качестве пигментов, нанесенные на бетонные образцы, после высыхания приобретают насыщенный красно-коричневый цвет (рис. 1).



Рис. 1. Силикатные краски с включением гальваношамов, нанесенные на цементобетонные образцы

образцы: **а** – гальваношлам Ярославского завода дизельной аппаратуры;

б – гальваношлам Тутаевского моторного завода

Fig. 1. Silicate paints with the inclusion of galvanic slurries applied to cement concrete samples:

a – electroplating of the Yaroslavl Diesel Equipment Plant;

b – electroplating of the Tutaevskiy Motor Plant

Полученные силикатные краски не имеют запаха и легко наносятся кистью на бетон. Все составы имеют однородную консистенцию, стабильны при хранении не менее 4 месяцев и могут транспортироваться в одноупаковочном виде. Перед применением рекомендуется про-



изводить кратковременное перемешивание системы. Для получения ровного плотного покрытия достаточно однократного нанесения, однако двукратное нанесение дает лучший результат. Краски быстро впитываются в поверхность и высыхают, образуя тонкослойное покрытие.

Анализ результатов испытаний показывает, что рассматриваемые составы при довольно большом расходе на окрашивание характеризуются хорошей адгезией к стеклянной подложке, однако имеют недостаточную стойкость при статическом воздействии воды на покрытие. При этом составы с гальваношлами в качестве пигмента по своим физико-химическим и основным эксплуатационным свойствам не уступают таковым с включением традиционной пигментной части. Состав силикатной краски с добавкой в состав сухой пигментной части до 15% мас. гальваношлама Ярославского завода дизельной аппаратуры рекомендуется к апробации в условиях промышленного производства.

ВЫВОДЫ

Показана возможность применения гальваношлов в качестве пигмента при производстве одноупаковочных силикатных красок. Выявлено, что краски с включением в состав пигментной части 15% мас. гальваношлов, содержащих медь, цинк, никель, хром, олово и свинец, имеют естественный красно-коричневых цвет, характерный для керамического кирпича, что позволяет рекомендовать их для окрашивания фасадов зданий. При этом достаточно высокая смываемость полученных покрытий при воздействии на них нагрузки 20 ± 2 Н требует проведения дальнейших исследований с целью оптимизации данного показателя.

ЛИТЕРАТУРА

1. **Китайчик Ф.** Силикатные фасадные краски: состав и строение (обзор литературы). ЛКМ и их применение. 2008. № 3. С. 18-21.
2. **Разговоров П.Б., Игнатьев А.А., Абрамов М.А., Нагорнов Р.С.** Переработка алюмосиликатного сырья и отвалов строительства метрополитена в композиционные сорбенты для очистки водных и маслосодержащих сред. Умные композиты в строительстве. 2020. Т. 1. Вып. 1. С. 10-26. URL: http://comincon.ru/index.php/tor/V1N1_2020.
3. **Лукомский Ю.Я., Горшков В.К., Разговоров П.Б.** Гальванические и лакокрасочные покрытия на алюминии и его сплавах. Иваново: Иван. гос. хим.-технол. ун-т. 2010. 239 с.
4. **Климанова Е.А., Барщевский Ю.А., Жилкин И.Я.** Силикатные краски. М.: Стройиздат. 1968. 86 с.
5. **Корюкин А.В.** Защитно-декоративные силикатные покрытия. ЛКМ и их применение. 1990. № 1. С. 34-38.
6. **Лендова Н.А., Коробовцева Т.А., Погребницкая Г.В.** Краски на основе жидкого стекла. ЛКМ и их применение. 1989. № 3. С. 101-103.
7. **Агафонов Г.И., Безгузикова И.А., Ицко Э.Ф.** Силикатные лакокрасочные материалы. М.: НИИТЭХИМ. 1989. 46 с. (Хим. пром-ть. Обзор. информация. Сер. «Лакокрасоч. пром-сть»).
8. **Разговоров П.Б.** Научные основы создания композиционных материалов из технических и природных силикатов. Автореф. дис. ... д-ра техн. наук. Иваново: Иван. гос. хим.-технол. ун-т. 2008. 32 с.
9. **Шинкарева Е.В.** Однокомпонентная силикатная краска на основе жидкого калиевого стекла производства ОАО «Домановский ПТК». ЛКМ и их применение. 2013. № 6. С. 28-33.



10. **Матвеев Л.Г., Лазарева В.В., Шкуро В.Г., Федотов А.И.** Патент РФ № 2007430. 1994.
11. **Гуляев А.А., Непомилуев А.М., Земляной К.Г.** Патент РФ 2272820 РФ. 2006.
12. **Юрова Н.А., Филиппова О.П.** Образование гальваношламов и способы их утилизации. Химия. Экология. Урбанистика: материалы Всероссийской науч.-практ. конф. молодых ученых, аспирантов, студентов и школьников (с междунар. участием). Пермь. 20-21 апреля 2017 г. Пермь: Изд-во Пермского нац. исслед. политехн. ун-та. 2017. С. 631-635.
13. **Соколов Э.М., Макаров В.М., Володин Н.И.** Комплексная утилизация гальваношламов машиностроительных предприятий: монография. М.: Машиностроение. 2005. 288 с.
14. **Иванова Е.В., Степанов Е.Г., Абрамов М.А.** Исследование свойств пигментов и наполнителей, полученных из гальваношламов машиностроительных производств. Вест. Рыбинск. гос. авиац. технол. акад. им. П.А. Соловьева. 2014. № 4 (31). С. 85-89.

Поступила в редакцию 10.11.2021

Принята к опубликованию 17.11.2021

REFERENCES

1. **Kitaichik F. Silicate architecture lpaints: composition and structure** (literary review). Lakokrasochnyye materialy i ikh primeneniye. 2008. N 3. P. 18-21 (in Russian).
2. **Razgovorov P.B., Ignatyev A.A., Abramov M.A., Nagornov R.S.** Processing of raw aluminosilicates and subway construction dumps into composite sorbents for purification of water and oil-containing media. Smart Composite in Construction. 2020. V. 1. N 1. P. 10-26; URL: http://comincon.ru/index.php/tor/V1N1_2020 (in Russian).
3. **Lukomskiy Yu.Ya., Gorshkov V.K., Razgovorov P.B.** Galvanic and paint coatings on aluminum and its alloys. Ivanovo: Ivan. gos. him.-tekhnol. un-t. 2010. 239 p. (in Russian).
4. **Klimanova E.A., Barshchevsky Yu.A., Zhilkin I.Ya.** Silicate paints. M.: Stroyizdat. 1968. 86 p. (in Russian).
5. **Koryukin A.V.** Protective and decorative silicate coatings. Lakokrasochnyye materialy i ikh primeneniye. 1990. N 1. P. 34-38 (in Russian).
6. **Lendova N.A., Korobovtseva T.A., Pogrebetskaya G.V.** Paints based on liquid glass. Lakokrasochnyye materialy i ikh primeneniye. 1989. N 3. P. 101-103 (in Russian).
7. **Agafonov G.I., Bezguzikova I.A., Itsko E.F.** Silicate paint and varnish materials. M.: NIITEKHIM.1989. 46 p. (Khim. prom-t'. Obzor. informaciya. Ser. «Lakokrasoch. prom-st'») (in Russian).
8. **Razgovorov P.B.** Scientific bases of creation of the composite materials from technical and natural silicates. Extended abstract of dissertation for doctor degree on technical sciences. Ivanovo: ISUCT. 2008. 32 p. (in Russian).
9. **Shinkareva E.V.** One-component silicate paint based on liquid potassium glass produced by JSC «Domanovsky PTK». Lakokrasochnyye materialy i ikh primeneniye. 2013. N 6. P. 28-33 (in Russian).
10. **Matveev L.G., Lazareva V.V., Shкуро V.G., Fedotov A.I.** Patent Russia N 2007430. 1994.
11. **Gulyaev A.A., Nepomiluyev A.M., Zemlyanoi K.G.** Patent Russia N 2272820. 2006.
12. **Yurova N.A., Filippova O.P.** Formation of galvanic sludge and methods of their disposal. Khimiya. Ekologiya. Urbanistika: materialy Vserossiyskoy naucho-prakticheskoy konferentsii molodykh uchennykh, aspirantov, studentov i shkolnikov (s mezhdunarodnym uchastiyem). g. Perm'. 20-21 aprelya 2017 g. Perm': Izd-vo Permskogo nac. issled. politekhn. un-ta. 2017. P. 631-635 (in Russian).



13. **Sokolov E.M., Makarov V.M., Volodin N.I.** Complex utilization of electroplating sludge of machine-building enterprises: monograph. M.: Mashinostroenie. 2005. 288 p. (in Russian).
14. **Ivanova E.V., Stepanov E.G., Abramov M.A.** Investigation of the properties of pigments and fillers obtained from electroplating sludge of machine-building industries. Vestnik Rybinskoy gosudarstvennoy aviatsionno-tekhnologicheskoy akademii im. P.A. Solovyeva. 2014. N 4(31). P. 85-89 (in Russian).

Received 10.11.2021

Accepted 17.11.2021