

# PŘIHLÁŠKA VYNÁLEZU

zveřejněná podle § 31 zákona č. 527/1990 Sb.

(19)  
ČESKÁ  
REPUBLIKA



ÚŘAD  
PRŮMYSLOVÉHO  
VLASTNICTVÍ

(22) Přihlášeno: **06.01.1995**  
(32) Datum podání prioritní přihlášky: **15.08.1994**  
(31) Číslo prioritní přihlášky: **1994/290220**  
(33) Země priority: **US**  
(40) Datum zveřejnění přihlášky vynálezu:  
**(Věstník č: 3/2004)**  
(86) PCT číslo: **PCT/US1995/000166**  
(87) PCT číslo zveřejnění: **WO 1996/005140**

(21) Číslo dokumentu:

**1997-469**

(13) Druh dokumentu: **A3**

(51) Int. Cl.<sup>7</sup> :  
**C01F 7/00**  
**C01B 13/36**

(71) Přihlašovatel:  
ALUMINUM COMPANY OF AMERICA, Alcoa  
Center, PA, US

(72) Původce:  
Martin Edward S., Alcoa Center, PA, US  
Horn William E. Jr., Alcoa Center, PA, US  
Stinson John M., Alcoa Center, PA, US  
Cedro Vito, Alcoa Center, PA, US

(74) Zástupce:  
Švorčík Otakar JUDr., Hálkova 2, Praha 2, 12000

(54) Název přihlášky vynálezu:  
**Způsob výroby vrstveného podvojného  
hydroxidu a hydrotalkitu podobných sloučenin  
ve formě prášku**

(57) Anotace:  
Způsob výroby syntetického hydrotalkitu spočívá v první reakci práškového oxidu hořečnatého s přechodovým oxidem hlinitým, který má velký specifický povrch, v suspenzi nebo kaši za účelem vytváření meixneritu podobného meziprojektu. Následně se meziprojekt přivádí do styku se zdrojem aniontů jako je kyselina, nejvýhodněji oxid uhličitý, za účelem vytváření vrstvené podvojně hydroxilové sloučeniny, která se nakonec ze suspenze odlučuje například filtrací, odstřediváním, vakuovanou dehydratací nebo vysoušením. Oxid hlinitý ve formě prášku má specifický povrch 100 m<sup>2</sup>/g nebo větší.

CZ 1997 - 469 A3

*(Vrstveného podvojného hydroxidů)*

## ZPŮSOB VÝROBY HYDROTALKITU A HYDROTALKITU PODOBNÝCH SLOUČENIN VE FORMĚ PRÁŠKU

### Oblast vynálezu

Předložený vynález se týká oblasti výroby takový produktů, jako jsou vícesložkové kovové hydroxidy nebo vrstvené podvojně hydroxidy. Konkrétně se předložený vynález týká zlepšeného způsobu výroby hydrotalkitu nebo hydrotalkitu podobných sloučenin ve formě suchých práškových komponent ve dvou krocích.

### Dosavadní stav techniky

Hydrotalkit existuje jak v přírodní, tak syntetické formě. V přírodě vyskytující se ložiska se nacházejí ve Snarumu v Norsku a v horském masivu Ural v Rusku. Charakteristicky se hydrotalkit v přírodě vyskytuje ve formě serpentínů, mastkových břidlic nebo alternativních produktů, ve kterých hydrotalkit tvoří pseudomorfózu spinelu. Jako u většiny rud je prakticky nemožné nalézt hydrotalkit v čistém ryzím stavu. V přírodě vyskytující se ložiska často obsahují jeden nebo více dalších minerálů, zahrnujících penninit a muskovit.

Pro výrobu syntetického hydrotalkitu ve formě jemného prášku, ~~jejímž produktem jsou granule o velikosti -20 mesh nebo~~ částice získané <sup>sk</sup> protlačováním o průměru 3,175 mm, je známo několik způsobů. Jeden z charakteristických způsobů je popsán v patentovém spisu U.S. č. 3,539,306. U tohoto způsobu se hydroxid hlinitý, sůl aminokyseliny hliníku, alkoholát hliníku, dusičnan hlinitý a/nebo sulfát hlinitý mísí ve vodném prostředí udržovaném na hodnotě pH 8 nebo více s komponentou na bázi

hořčíku zvolenou ze skupiny oxid hořečnatý, hydroxid hořečnatý nebo ve vodě rozpustnou sůl hořčíku a ionty uhličitanu obsahující sloučeninu. Výsledný produkt se může použít jako žaludeční antacid, to je lék podporující trávení. Při tomto charakteristickém neutralizačním procesu se vytváří přijatelně čistý hydrotalkit s vynikající velikostí částic. Podstatnou nevýhodou uvedeného způsobu je však, bohužel, vytváření sodné soli jako vedlejšího produktu. Při zmíněném neutralizačním procesu při výrobě hydrotalkitů by se rovněž mohla vytvářet brucitu podobná struktura, obsahující nežádoucí anionty (např. sulfát) nebo kationty ( $\text{Na}^+$ ).

V již publikovaném patentovém spisu U.S. č. 34,164, původce Misra, jehož celý popis je začleněn do odvolávek, popisuje další způsoby syntézy hydrotalkitu. Navrhovaný způsob zahrnuje ohřev uhličitanu hořečnatého a/nebo hydroxidu hořečnatého za účelem vytváření aktivovaného oxidu hořečnatého, následovaný slučováním aktivovaného oxidu hořečnatého s vodným roztokem iontů hlinitanu, uhličitanu a hydroxyly.

Další známé způsoby syntézy hydrotalkitu zahrnují: přidávání tuhého oxidu uhličitého nebo uhličitanu amonného za účelem tepelného rozkladu produktu ze směsi dusičnan hořečnatý - dusičnan hlinitý, následované vystavením meziproduktu teplotám ležících pod asi  $150^\circ\text{C}$  a tlakům v rozmezí od  $357.5\text{ kg}\cdot\text{cm}^{-2}$  do  $3575\text{ kg}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Podle dalšího způsobu, popsaného ve stati "Properties of a Synthetic Magnesium-Aluminum Carbonate Hydroxide and its Relationship to Magnesium-Aluminum Double Hydroxide Manasseite, and Hydrotalcite (Vlastnosti syntetického vodnatého zásaditého hořečnato-hlinitého uhličitanu a jeho příbuznost s podvojným hořečnato-hlinitým hydroxidem a hydrotalkitem)" a publikovaného v The American Mineralogist, svazek 52, str. 1036-1047 (1967), se hydrotalkitu podobné materiály vytváří prostřednictvím titrace roztoku  $\text{MgCl}_2$  a  $\text{AlCl}_3$

s NaOH v v soustavě prosté oxidu uhličitého. Vytvořená suspenze je podrobena dialýze po dobu 30 dní při teplotě 60° C za účelem vytváření hydratovaného Mg-Al uhličitánu, majícího vlastnosti jak podvojného hořečnato-hlinitého hydroxidu, tak hydrotalkitu.

### Podstata vynálezu

Základním cílem a předmětem předloženého vynálezu je navrhnout zdokonalený způsob výroby syntetických hydrotalkitů a hydrotalkitu podobných sloučenin ze dvou nebo více na výrobní náklady relativně nenáročných komponent ve formě suchých prášků. Dalším cílem a předmětem předloženého vynálezu je navrhnout zdokonalený způsob výroby hydrotalkitu a příbuzných materiálů s nižší kontaminací ionty sodíku. Dalším cílem a předmětem předloženého vynálezu je navrhnout způsob syntézy hydrotalkitu bez závislosti na použití jakýchkoliv gelů oxidu hlinitého. Dalším cílem a předmětem předloženého vynálezu je vytváření hydrotalkitu nebo hydrotalkitu podobných sloučenin spočívající v dalším zpracování zdokonaleného meixneritového produktu, vytvořeného sloučením aktivovaného oxidu hořečnatého s přechodovým oxidem hlinitým, který má velký specifický povrch.

Dalším základním cílem a předmětem předloženého vynálezu je navrhnout výrobu hydrotalkitu a hydrotalkitu podobných sloučenin způsobem, který je přijatelný pro životní prostředí. Podle přednostních, v tomto popisu dále popsaných provedení syntetických hydrotalkitů, vytvořených na základě předloženého vynálezu, nepřináší způsob jejich výroby žádné další vedlejší produkty kromě vody. Přičemž všechna zbývající vyloučená voda může být, vzhledem k jejich nízkému obsahu rozpuštěných pevných fází, snadno použitelná.

Zdokonalený způsob výroby syntetického hydrotalkitu je navržen v souladu s předcházejícími, shora uvedenými předměty a výhodami. Tento způsob zahrnuje slučování práškového oxidu hořečnatého s přechodovým oxidem hlinitým, který má velký specifický povrch, v suspenzi nebo kaši za účelem vytváření meixneritu nebo meixneritu podobného meziprojektu. Následně se meziprojekt přivádí do styku se zdrojem aniontů takovým jako kyselina nebo kyselá elementární částice, nejvýhodněji oxid uhličitý, za účelem vytváření vrstvené podvojně hydroxidové sloučeniny, která se nakonec ze suspenze odlučuje prostřednictvím filtrace, odstředování, vakuové dehydratace, vysoušení nebo jinými, ze stavu techniky známými způsoby. Podle přednostního provedení obsahuje, takto sloučený přechodový oxid hlinitý s aktivovaným oxidem hořečnatým, v podstatě aktivovaný oxid hlinitý ve formě prášku, který má specifický povrch kolem 100 m<sup>2</sup>/g nebo větší. Za účelem dosažení příbuzných podvojných hydroxidových struktur se s meixneritem jako meziprojektu slučují další reakční složky zvolené ze skupiny obsahující bromidy, chloridy, kyselinu boritou nebo její soli, následkem čehož dochází k vytváření podobně strukturovaných, brucitu podobných, vrstvených podvojných hydroxidových příbuzných sloučenin.

#### Definice:

V popisu provedení způsobu podle předloženého vynálezu budou používány termíny, jejichž význam je uveden v následujícím textu:

a). "Přechodový oxid hlinitý" představuje oxid hlinitý s velkým specifickým povrchem ve formě prášku nebo jemných částic. Jeden z přednostních způsobů definování takových materiálů na bázi oxidu hlinitého je založen na měření

velikosti specifického povrchu a hmotnosti ztráty spalováním (L.O.I.). Konkrétně, oxid hlinitý, který má velikost specifického povrchu měřeného metodou Brunauer-Emmett-Teller (nebo B.E.T.) kolem  $100 \text{ m}^2/\text{g}$  nebo více, musí být považován za oxid hlinitý s velkým specifickým povrchem a takto tedy kvalifikován jako přechodový oxid hlinitý, vyhovující pro účely předloženého vynálezu. Oxidy hlinité, které mají hmotnost L.O.I. kolem 1,5 % původní hmotnosti nebo větší, musí být rovněž kvalifikován jako vyhovující pro účely předloženého vynálezu

Jeden ze specifických typů přechodových oxidů hlinitých je v popisu zmiňován jako "rehydratovaný oxid hlinitý". Tento oxid hlinitý má při slučování s vodou sklon k vytváření silných hydroxylových vazeb a jeho rehydratační reakce jsou vysoce exotermické. Průměrná velikost částic takových oxidů hlinitých může být v rozmezí od  $0,01$  do  $200 \text{ }\mu\text{m}$ , přičemž se upřednostňuje velikost v rozmezí od  $0,1$  do  $10 \text{ }\mu\text{m}$  nebo  $20 \text{ }\mu\text{m}$ .

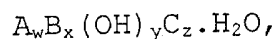
Pro účely předloženého vynálezu jsou určité typy aktivovaných oxidů hlinitých vhodnější než ostatní. Nejčastěji se oxidy hlinité s velkým specifickým povrchem vytváří prostřednictvím rychlé kalcinace hydratovaného oxidu hlinitého při teplotách, které jsou nižších než teploty požadované pro úplnou dehydrataci nebo kalcinaci. Charakteristicky jsou, na základě stanovení rentgenovou difrakcí, takto vytvořené oxidy hlinité amorfni (tj. nemají mikrokystalickou strukturu). Tyto prášky vykazují hmotnost L.O.I. kolem 4 až 12 % původní hmotnosti a velikost specifického povrchu B.E.T. ležící v rozmezí  $200$  až  $300 \text{ m}^2/\text{g}$ .

b). "Aktivovaná magnézie" nebo aktivovaný oxid hořečnatý představuje produkt na bázi hořčíku, aktivovaný prostřednictvím "měkkého spalování"  $\text{MgO}$  při jedné nebo více

teplotách ležících v rozmezí od 450 do 900<sup>o</sup> C. Tato komponenta má obecně velikost specifického povrchu asi 10 až 200 m<sup>2</sup>/g, výhodně asi 20 až 150 m<sup>2</sup>/g, a <sup>hmotnost</sup> L.O.I. pohybující se v rozmezí od 1,0 do 6,0 % původní hmotnosti. Na základě těchto kritérií lze rozlišovat shora uvedenou reakční složku od oxidů hořečnatých, které byly zpracovávány spalováním nebo úplnou kalcinací. Ačkoli je možné posledně jmenované komponenty ještě používat pro vytváření meixneritu, i když při delších reakčních dobách nebo za velice náročných reakčních podmínek, jsou procentuální výtěžky z takových podmínek jsou podstatně nižší než za podmínek navržených přednostně podle předloženého vynálezu.

Výroba produktu na bázi aktivovaného oxidu hořečnatého produktu pro účely slučování s přechodovými oxidy hlinitými podle prvního kroku způsobu navrženého podle předloženého vynálezu může být prováděna na základě <sup>vedu</sup> množství ze stavu techniky známých způsobů. Například, z komerčně prodávaného uhličitanu hořečnatého se může na základě ohřevu vypudit oxid uhličitý a takto vytvořit reaktivní, pro účely předloženého vynálezu vhodný oxid hořečnatý. Oxid hořečnatý může být rovněž vyroben: (a) na základě ohřevu přírodního nebo syntetického hydroxidu hořečnatého nebo zásaditého uhličitanu hořečnatého při teplotách pohybujících se v rozmezí od 380<sup>o</sup> do 950<sup>o</sup> C; nebo (b) na základě ohřevu MgCl<sub>2</sub> vápnem. Pro vytváření oxidů hořečnatých ve formě prášků s různou velikostí částic a/nebo specifickým povrchem mohou být použity různé, ze stavu techniky známé způsoby.

c). "Hydrotalkitové" sloučeniny a jejich význam budou objasněny na základě aplikace se strukturální příbuzností vrstvených podvojných hydroxidů, jejichž příbuzné sloučeniny sestávají z kterékoliv sloučeniny, jejíž chemický vzorec je:



kde:

A představuje kationt dvojmocného kovu,

B kationt trojmocného kovu,

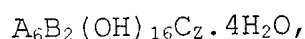
C jedno - až vícemocný aniont a

w, x, y, z a n odpovídají následujícím podmínkám:

$$0 < z \leq x \leq 4 \leq w \leq 1/2 \cdot y \text{ a}$$

$$12 \geq n \geq 1/2 \cdot (w-x).$$

Přednostní provedení těchto příbuzných sloučenin je stanoveno prostřednictvím chemického vzorce:



kde:

A se volí ze skupiny:  $Mg^{2+}$ ,  $Ni^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $Fe^{2+}$  a  $Zn^{2+}$ ;

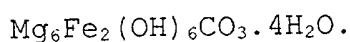
B ze skupiny:  $Al^{3+}$ ,  $Fe^{3+}$  a  $Cr^{3+}$ ; a

C ze skupiny aniontů, která zahrnuje:

$OH^-$ ,  $Cl^-$ ,  $Br^-$ ,  $NO_3^-$ ,  $CH_3COO^-$ ,  $CO_3^{2-}$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $PO_4^{3-}$ ,  $Fe(CN)_6^{3-}$ ,  $Fe(CN)_6^{4-}$

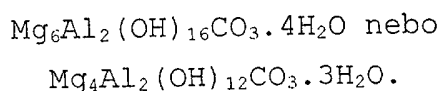
a některé boritany, karboxyláty a polyoxometaláty se  $1/2 \leq z \leq 2$  (které je závislé na obsahu v nich substituovaných aniontů).

V některých případech jsou sloučeniny, vztahující se ke kterékoli sloučenině se shora uvedeným chemickým vzorcem, označovány jako "hydrotalkity". Pro účely předloženého vynálezu však byly tyto strukturně příbuzné sloučeniny rozděleny do různých podskupin, jejichž rozdělení je závislé na množství dvojmocných a trojmocných kationtů v jejich střídajících se brucitu podobných vrstvách. Například, pyroaurity mají základní chemický vzorec:

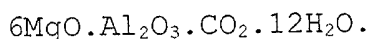


Takové sloučeniny jsou rovněž známé jako "sjogrenity". Všeobecně jsou v popisu takové příbuzné sloučeniny označovány jako "hydrotalkitu podobné" sloučeniny.

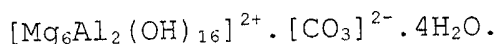
Podle dalšího přednostního vymezení zahrnuje termín "hydrotalkit" kteroukoliv přírodní nebo syntetickou sloučeninu, která odpovídá chemickému vzorci:



Uvedená sloučenina je rovněž někdy popisována chemickým vzorcem:



Pro sloučeninu v iontové formě může chemický vzorec hydrotalkitu vypadat takto:

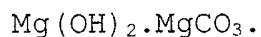


Základní strukturní jednotkou této sloučeniny je brucit, nebo hydroxid hořečnatý ( $\text{Mg}(\text{OH})_2$ ) ve formě osmihraných desek s ionty Mg uspořádanými mezi vícestupňovými ionty (OH), se kterými mají společné přilehlé okraje. Substitucí trojmocných iontů hliníku za určité dvojmocné ionty hořčíku v této struktuře se vytváří mezivrstvy hořčíku a hliníku, ačkoli se stále ještě udržuje základní brucitu podobná struktura. Pro kompenzaci nerovnováhy obsahu těchto substituovaných iontů hliníku se vkládají do systému anionty (stanovené písmenem "C" ve shora uvedeném chemickém vzorci) a molekuly vody za účelem vytváření mezivrstev ( $\text{C}_z \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ) mezistrukturními brucitu podobnými vrstvami se  $1/2 \leq z \leq 2$ , které je závislé na obsahu

takto vložených aniontů). Tento aniont má v uvedené struktuře největší afinitu k chemickým vazbám s vodou a vytvořený hydrotalkit má formu uhličitanu ( $\text{CO}_3^{2-}$ ). Dalším kompatibilním aniontem je sulfát ( $\text{SO}_4^{2-}$ ).

Prostorová distribuce iontů uhličitanů uvnitř hydrotalkitu částečně závisí na tom, jak jsou v systému ionty  $\text{Al}^{3+}$  substituovány ionty  $\text{Mg}^{2+}$ . Odstup brucitových vrstev je rovněž funkcí objemu nebo stupně substituce hliníku do základní struktury hydrotalkitu. Se zvyšováním objemu substituce se odstup mezi vrstvami snižuje následkem nárůstu elektrostatické přitažlivosti mezi hydroxidovými vrstvami kladné polaroty a mezivrstvami hydrotalkitu záporné polaroty. Tloušťky mezivrstev se rovněž mohou měnit a to v závislosti na velikosti a orientaci aniontů substituovaných za určité nebo všechny ionty uhličitanů v hydrotalkitu. Pro přednostní provedení materiálu na bázi hydrotalkitu se předpokládá poměr  $\text{Mg}:\text{Al}$  pohybující se v rozmezí od 2 ( $x = 0,33$ ) do 3 ( $x = 0,25$ ) nebo výše.

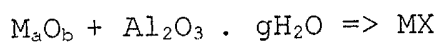
d). "Zásaditý uhličitan hořečnatý" představuje dvojjápenatou sůl, obsahující jak hydroxidové, tak uhličitanové anionty v témže práškovém produktu, která bývá někdy popisována prostřednictvím následujícího chemického vzorce:



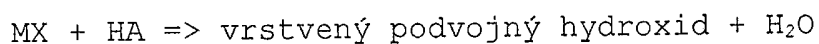
e). "Meixnerit" představuje materiál na bázi hydrotalkitu podobného, vrstveného podvojného hydroxidu, ve kterém jsou všechny vložené anionty hydroxyly.

Obecně a stručně vyjádřený průběh reakcí, které se vyskytují při provádění způsobu podle předloženého vynálezu popsaného v tomto dokumentu je následující:

Krok 1.

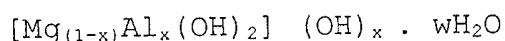
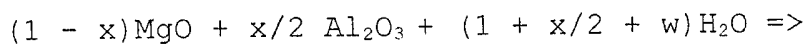


Krok 2.



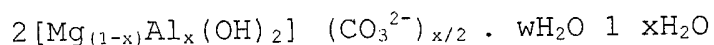
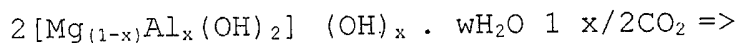
Uvažuje se, že při provádění způsobu výroby hydrotalkitu podle předloženého vynálezu se mohou přednostně vyskytovat následující dva kroky:

Krok 1:



následovaný

Krokem 2:



Bylo ověřeno, že pro určité reakční složky ve formě suchého prášku jsou při slučování s vodným roztokem výhodná, vzhledem k celkovému výtěžku produktu, určitá teplotní omezení. Ačkoli Krok 1 shora uvedené reakce může probíhat, při použití vápník obsahujících sloučenin, i při teplotách 25°C, provádí se obvykle s výhodou při jedné nebo více teplotách ležících v rozmezí od 80 do 160°C, zejména pro hořčík obsahující vrstvené podvojný hydroxidy vytvořené prostřednictvím způsobu podle předloženého vynálezu. Při uvedených teplotách se tímto způsobem výroby dosahuje obvykle vyšších výtěžků než podle stávajícího stavu techniky, asi 75 %. Ještě výhodnějšími

reakčními teplotami jsou teploty ležící v rozmezí od 98 do 150<sup>o</sup> C. Ačkoli použití vyšších reakčních tlaků, až do asi 8 atmosfér (nebo atm), pro zvyšování objemu syntézy hydrotalkitu a hydrotalkitu podobných sloučenin bylo již známo ze stavu techniky, pohybují se používané přednostní reakční tlaky podle předloženého vynálezu obvykle v rozmezí od tlaku prostředí do tlaku 4,7 atm, který je vymezen prostřednictvím tlaku vodní páry.

Odovídající konečné využití produktů na bázi hydrotalkitu, vytvořených na základě způsobu podle předloženého vynálezu zahrnuje: kyselé neutralizátory a akceptory radikálů, zejména pro výrobce polypropylénu a polyetylénu, adsorpční činidla pro adsorpci aniontů těžkých kovů z odpadních vod, stabilizační komponenty pro další polymerové systémy, takové jako poly<sup>VC</sup>(vinyl chlorid), přísady zpomalující hoření, kouřové potlačovače, katalyzátory, nosiče katalyzátorů a činidla regulující viskozitu.

Další charakteristické znaky, předměty a výhody předloženého vynálezu budou objasněny v následujícím podrobném popisu příkladů konkrétního provedení. Je však pochopitelné, že uvedené příklady jsou pouze reprezentativními ukázkami způsobu podle předloženého vynálezu a žádným způsobem neomezují jeho popsany nárokovaný rozsah.

#### Příklady provedení vynálezu

##### Příklady 1 až 7

Každý z následujících příkladů byl prováděn v reaktoru s vnitřním mícháním a objemu 1,8 litru, který byl naplněn objemem 750 ml deionizované vody. Rovněž v každém z příkladů byl po přidání do vody příslušných jednotlivých dvojmocných a

trojmocných kovových sloučenin a jejich dispergování prostřednictvím kontinuálního míchání objemem reaktoru probubláván oxid uhličitý z přetlakového válce. Po proběhnutí odpovídajících reakčních dob byla suspenze v reaktoru ochlazena a přebytek oxidu uhličitého postupně odvětrán do okolní atmosféry. Výsledná suspenze pak byla vakuově filtrována použitím Büchnerovy nálevky a vzorek každého filtrátu se dále vysoušel při vakuu před prováděním jejich rentgenové difrakční analýzy pro stanovení krystalických fází přítomných v produktu ve formě vysušených pevných částic.

#### Komparativní příklad 1

100 gramů zásaditého vodnatého uhličitánu hořečnatého, jehož chemický vzorec je  $Mg_5(CO_3)_4(OH)_2 \cdot 4H_2O$  a 47 gramů rozemletého hydroxidu hlinitého s průměrnou velikostí částic 10,0  $\mu m$  bylo vsazeno do reaktoru. Po dosažení tlaku 34,3 atm v reaktoru byl do reaktoru zaveden oxid uhličitý. Teplota v reaktoru byla pak udržována v rozmezí mezi 25 až 26 °C po dobu přibližně 4 hodiny. Analýza vysušených pevných částic výsledného produktu vyjmutého z reaktoru vykazovala přítomnost zásaditého vodnatého uhličitánu hořečnatého a oxidu hlinitého jako hydrargillitu, bohužel však žádný hydrotalkit.

#### Komparativní příklad 2

V tomto případě bylo do reaktoru vsazeno 100 gramů jiného zásaditého vodnatého uhličitánu hořečnatého se 41,7 gramy téhož rozemletého  $Al(OH)_3$  jako v Příkladu 1. Po dosažení tlaku 36,4 atm byl do reaktoru zaveden kapalný oxid uhličitý. Teplota v reaktoru byla udržována v rozmezí mezi 48 až 53 °C po dobu přibližně 4 hodiny. Analýza vysušených pevných částí výsledného produktu vyjmutého z reaktoru opět vykazovala

přítomnost zásaditého vodnatého uhličitanu hořečnatého a hydrargillitu, bohužel však žádný hydrotalkit.

### Komparativní příklad 3

V tomto případě bylo do reaktoru vloženo stejné množství zásaditého vodnatého uhličitanu hořečnatého a rozemletého  $\text{Al}(\text{OH})_3$  jako v Příkladu 2. Při tlaku 43,9 atm byl zaveden do reaktoru oxid uhličitý, načež byla suspenze v reaktoru udržována při teplotě 90 °C po dobu 4 hodiny. Analýza stále neukázala žádné známky hydrotalkitu ve výsledném produktu ve formě částic.

### Příklad 4

V tomto případě bylo do reaktoru vsazeno stejně jako v předcházejících příkladech 100 gramů stejného zásaditého vodnatého uhličitanu hořečnatého se 31,0 gramy rehydratovaného oxidu hlinitého s průměrnou velikostí částic 2,0  $\mu\text{m}$ . Suspenze byla míchána při pokojové teplotě po dobu 3 hodiny, přičemž bylo do reaktoru zaváděno dostatečné množství kapalného oxidu uhličitého za účelem zvýšení celkového tlaku v reaktoru na 40,1 atm. Celá soustava byla pak ohřívána na teplotu 50 °C po dobu 2 hodiny. Pomocí rentgenové difrakční analýzy byl ve vysušeném filtračním produktu z reaktoru zjištěn majoritní obsah hydrotalkitu.

### Příklad 5

V tomto případě bylo do reaktoru vsazeno stejně jako v předcházejících příkladech 100 gramů téhož zásaditého vodnatého uhličitanu hořečnatého se 38,7 gramy pseudoboehmitu, dodávaného na trh firmou Vista Chemical Co. pod obchodním názvem Catapal<sup>R</sup> SB, přičemž uvedený materiál sestává z aglomerátu o

průměru 65  $\mu\text{m}$  vytvořeného ze základních částic o velikosti 0,1  $\mu\text{m}$ . Po dosažení celkového tlaku o hodnotě 42,5 atm v reaktoru bylo zaváděno do reaktoru dostatečné množství oxidu uhličitého. Následně byla celá soustava udržována na teplotě v rozmezí od 48 do 52  $^{\circ}\text{C}$  po dobu 4 hodiny. Rentgenová difrakční analýza výsledného vysušeného filtračního produktu z reaktoru vykazovala přítomnost majoritního obsahu hydrotalkitu.

#### Příklad 6

V tomto případě bylo použito stejné množství zásaditého vodnatého uhličitanu hořečnatého a pseudobohmitu v Příkladu 5, bylo opětně vsazeno do reaktoru. Po dosažení tlaku 52,0 atm a zavedení oxidu uhličitého byla vsázka v reaktoru udržována na teplotě 90  $^{\circ}\text{C}$ . Ve výsledném filtračním produktu byla zjištěna přítomnost majoritního obsahu hydrotalkitu (pomocí rentgenové difrakční analýzy).

#### Příklad 7

V tomto případě bylo použito stejné množství zásaditého vodnatého uhličitanu hořečnatého a rehydratovaného oxidu hlinitého jako v Příkladu 4, bylo opětně vsazeno do reaktoru, ale v tomto Příkladu na rozdíl od předcházejících příkladů nebyl do suspenze zaváděn žádný oxid uhličitý. Následně byla soustava ohřívána na teplotu 50  $^{\circ}\text{C}$  po dobu 2 hodiny. Výsledný filtrační produkt byl pomocí rentgenové difrakční analýzy analyzován na obsah majoritního obsahu hydrotalkitu jako v předcházejících příkladech. Stupeň přeměny zásaditého vodnatého uhličitanu hořečnatého byl však při porovnání rentgenových difrakcí při špičkových hustotách uvedených produktů v případě Příkladu 7 menší než v případě Příkladu 4 .

Příklady 8 až 13

Pro každý z těchto příkladů bylo za účelem vytvoření suspenze přibližně 70 gramů MgO a 45,6 gramů rehydratovaného  $\text{Al}_2\text{O}_3$  smíšeno s objemem 1200 ml deionizované vody v baňce s kulatým dnem. Následně byla suspenze míchána a ohřívána na teplotu atmosférického varu. Vnitřní objem baňky nad suspenzí byl profukován dusíkem za účelem zabránění reakce s  $\text{CO}_2$ , obsaženém ve vzduchu. Po šesti hodinách byly z reaktoru vyjmuty vzorky výsledného produktu a analyzovány. Analýzou bylo v těchto vzorcích zjištěno významné množství meixneritu. Po 22 hodinách varu byla přeměna soustavy téměř úplná. Následně byly určité dílčí objemy uvedené suspenze ochlazovány pod teplotu  $40^\circ\text{C}$  a zpracovávány plynným oxidem uhličitým nebo atmosférickým vzduchem za účelem přeměny meixneritu na hydrotalkit. Vzorky vyjmuté z této suspenze při analýze rentgenovou difrakcí vykazovaly majoritní obsah hydrotalkitu. Oxalátová forma produktu podle Příkladu 11 byla vytvořena přidáním kyseliny oxalové do meixneritové suspenze při teplotě v rozmezí od  $26$  do  $30^\circ\text{C}$ . Boritanová forma hydrotalkitu podle Příkladu 12 byla vytvořena přidáním kyseliny borité do meixneritové suspenze a stearanová forma produktu podle Příkladu 13 byla vytvořena sloučením meixneritu s kyselinou stearovou.

Pro osobu obeznámenou se stavem techniky je ze shora uvedených a popsanych přednostních provedení zřejmé, že podle předloženého vynálezu je možné vytvořit jeho další provedení, aniž by došlo k překročení rozsahu připojených patentových nároků.

## P A T E N T O V É   N Á R O K Y

1. Způsob výroby vrstveného podvojného hydroxidu ve formě prášku vyznačující se tím, že zahrnuje následující kroky:

(a) slučování alespoň jednoho oxidu trojmocného kovového ve formě prášku s alespoň jednou sloučeninou dvojmocného kovu ze skupiny sestávající z hydroxidů, oxidů, uhličitánů a jejich směsí ve vodné suspenzi za vytváření podvojného hydroxidového meziprojektu;

(b) přivádění podvojného hydroxidového meziprojektu do styku se zdrojem aniontů za vytváření vrstveného podvojného hydroxidu; a

(c) odlučování vrstveného podvojného hydroxidu ze suspenze.

2. Způsob podle nároku 1, vyznačující se tím, že (1) trojmocný <sup>železo</sup> kovový oxid ve formě prášku <sup>ze</sup> z přechodového oxidu hlinitého a/nebo (2) dvojmocná <sup>železo</sup> kovová sloučenina je vybrána ze skupiny sestávající z: oxidu hořčíku, hydroxidu hořčíku, uhličitanu hořčíku nebo jejich směsí, oxidu zinku obsahujícího sloučeniny, oxidu mědi obsahujícího sloučeniny, oxidu niklu obsahujícího sloučeniny, oxidu železa obsahující sloučeniny, oxidu vápníku obsahujícího sloučeniny nebo oxidu manganu obsahujícího sloučeniny nebo jejich směsí.

3. Způsob podle nároku 1 nebo 2, vyznačující se tím, že (1) trojmocný kovový oxid ve formě prášku je vybrán ze skupiny sestávající z dehydratovaného oxidu hlinitého, s výhodou aktivovaného oxidu hlinitého se specifickým povrchem měřeným dle B.E.T. <sup>nejméně</sup> asi 100 m<sup>2</sup>/g nebo více a/nebo (2) dvojmocná <sup>železo</sup> kovová sloučenina ~~sestává v~~ podstatě z oxidu hořčíku, hydroxidu hořčíku, uhličitanu hořčíku nebo jejich směsí, s výhodou ze zásaditého uhličitanu hořečnatého, oxidu hořečnatého,

\* je vybrána ze skupiny sestávající z

zásaditého vodnatého uhličitanu hořečnatého nebo jejich směsí, s výhodou zásaditého vodnatého uhličitanu hořečnatého.

4. Způsob podle nároku 1, 2 nebo 3, vyznačující se tím, že zdroj aniontů pro krok (b) se volí ze skupiny sestávající z: oxidu uhličitého; uhličitan obsahující sloučeniny; ~~kyseliny vybrané ze skupiny sestávající z:~~ bromovodíku, kyseliny borité, kyseliny octové, kyseliny oxalové, kyseliny stearové; a amonné soli ~~kyseliny vybrané ze skupiny sestávající z:~~ bromovodíku, kyseliny borité, \*kyseliny octové,\* kyseliny oxalové,\* kyseliny stearové a jejich směsí.

5. Způsob podle kteréhokoli z nároků 1 až 4 vyznačující se tím, že zahrnuje následující kroky:

(a) slučování hořčík obsahujícího prášku s práškovým přechodovým oxidem hlinitým ve vodné suspenzi za vytváření meixneritu jako meziprojektu;

*bojen* (b) přivádění meixneritového meziprojektu do styku s<sup>oxygen</sup> uhličitan<sup>i</sup> obsahujícími ionty, zejména kysličníkem uhličitém za vytváření hydrotalkitové sloučeniny; a

(c) odlučování hydrotalkitové sloučeniny ze suspenze.

6. Způsob podle kteréhokoli z nároků 1 až 3, vyznačující se tím, že zahrnuje následující kroky:

(a) slučování hořčík obsahujícího prášku s práškovým přechodovým oxidem hlinitým ve vodné suspenzi za vytváření meixneritu jako meziprojektu;

(b) přivádění meixneritového meziprojektu do styku se solí alkalického kovu obsahující chlorid, bromid nebo jodid nebo jejich směs; a

(c) odlučování hydrotalkitu podobné sloučeniny ze suspenze.

7. Způsob podle nároku 6, vyznačující se tím, že s<sup>o</sup> s<sup>o</sup>l<sup>o</sup> alkalického kovu je bromid sodný pro vytváření bromované<sup>i</sup>,

*o amonné soli*

hydrotalkitu podobné sloučeniny při kroku (c), nebo chlorid sodný pro vytváření chlorované, hydrotalkitu podobné sloučeniny při kroku (c), a/nebo krok (a) se provádí při jedné nebo více teplotách ležících nad teplotou  $80^{\circ}\text{C}$ , zejména v rozmezí teplot od  $98$  do  $150^{\circ}\text{C}$ .

8. Způsob podle kteréhokoli z nároků 1 až 3, vyznačující se tím, že zahrnuje následující kroky:

(a) slučování hořčík obsahujícího prášku s práškovým přechodovým oxidem hlinitým ve vodné suspenzi za vytváření meixneritu jako meziprojektu;

(b) přivádění meixneritového meziprojektu do styku s vyšším množstvím iontů boritanu za vytváření bór obsahující, hydrotalkitu podobné sloučeniny; a

(c) odlučování hydrotalkitu podobné sloučeniny ze suspenze.

9. Způsob podle nároku 8, vyznačující se tím, že přivádění do styku s ionty boritanu při kroku (b) spočívá v přidávání sloučeniny bóru \* tvořené trihydrogenborit<sup>ky</sup>  $\text{H}_3\text{BO}_3$ , trihydrogentriboritan<sup>o. u. kyselina</sup>  $\text{H}_3\text{B}_3\text{O}_6$ , diboritan<sup>u. u. kyselina</sup>  $\text{Na}_2\text{B}_2\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ , diboritan<sup>u. u. kyselina</sup> sodný  $\text{Na}_2\text{B}_2\text{O}_7$ , dioxoboritan<sup>u. u. kyselina</sup> sodný  $\text{NaBO}_2\text{NaB}_5\text{O}_8$  nebo dekaoxoboritan<sup>u. u. kyselina</sup> draselný  $\text{K}_2\text{B}_{10}\text{O}_{16}$ , nebo jejich směsí.

10. Způsob podle kteréhokoli z nároků 1 až 3, vyznačující se tím, že zahrnuje následující kroky:

(a) slučování hořčík obsahujícího prášku s práškovým přechodovým oxidem hlinitým ve vodné suspenzi za vytváření meixneritu jako meziprojektu;

(b) přivádění meixneritového meziprojektu do styku s vyšším množstvím iontů oxalátu za vytváření oxalát obsahující, hydrotalkitu podobné sloučeniny; a

(c) odlučování hydrotalkitu podobné sloučeniny ze suspenze.

\* vybrané ze skupiny,

11. Způsob podle kteréhokoli z nároků 1 až 3, vyznačující se tím, že zahrnuje následující kroky:

(a) slučování hořčík obsahujícího prášku s práškovým přechodovým oxidem hlinitým ve vodné suspenzi za vytváření meixneritu jako meziprojektu;

(b) přivádění meixneritového meziprojektu do styku s <sup>přebytkem</sup> vyšším množstvím iontů stearanu za vytváření stearan obsahující, hydrotalkitu podobné sloučeniny; a

(c) odlučování hydrotalkitu podobné sloučeniny ze suspenze.

12. Způsob podle nároku 11, vyznačující se tím, že krok (b) spočívá v přivádění suspenze do styku s kyselinou stearovou, ~~nebo jejich směsí,~~