



(12) CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: a 2010 01106

(22) Data de depozit: 12.11.2010

(41) Data publicării cererii:  
28.10.2011 BOPI nr. 10/2011

(71) Solicitant:  
• INSTITUTUL DE CHIMIE FIZICĂ "ILIE MURGULESCU", SPLAIUL INDEPENDENȚEI NR.202, BUCUREȘTI, B, RO;  
• INSTITUTUL NAȚIONAL DE CERCETARE, DEZVOLTARE PENTRU INGINERIA ELECTRICA, ICPE-CA, SPLAIUL UNIRII NR.313, BUCUREȘTI, B, RO;  
• UNIVERSITATEA POLITEHNICA BUCUREȘTI, STR.GHE.POLIZU NR.7, BUCUREȘTI, B, RO

(72) Inventatori:  
• CARP OANA, STR. VIITORULUI NR. 197 BL. 42B, AP. 28, ET. 7, SECTOR 4, BUCUREȘTI, B, RO;  
• VIȘINESCU DIANA BEATRICE, STR. GEN.E.GRIGORESCU NR.22, BL.58, AP.27, PLOIEȘTI, PH, RO;  
• SOCOTEANU GRETA MIHAELA, ALEEA PLATANULUI NR.2, BL.A 29, SC.1, AP.1, SECTOR 5, BUCUREȘTI, B, RO;

• JURCA ALINA, BD. TIMIȘOARA NR.83, BL.D35, SC.A, AP.7, SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO;  
• TUDOSE MĂDĂLINA, CALEA 13 SEPTEMBRIE NR.235, BL.V 3, SC.1, ET.3, AP.14, SECTOR 5, BUCUREȘTI, B, RO;  
• JURCA BOGDAN, BD. TIMIȘOARA NR.83, BL. D 35, SC.1, AP.7, SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO;  
• MAZILU CLAUDIU OCTAVIAN, STR. PREVEDERII NR.17, BL. R 13, AP.17, SC.A, ET.4, SECTOR 3, BUCUREȘTI, B, RO;  
• ȘTEFĂNESCU CARMEN, STR. BABA NOVAC NR.22, BL. 24 C, SC.B, AP.64, SECTOR 3, BUCUREȘTI, B, RO;  
• CUCOS ANDREI, ALEEA BARAJUL DUNĂRII NR.4B, BL. 21 B, SC.1, AP.1, SECTOR 3, BUCUREȘTI, B, RO;  
• BUDRUGEAC PETRU, STR. STOIAN MILITARU NR.101, BL.3, SC.E, ET.3, AP.48, SECTOR 4, BUCUREȘTI, B, RO;  
• IANCULESCU ADELINA-CARMEN, STR.ODOBEȘTI NR.5, BL.Z1, SC.1, ET.3, AP.14, SECTOR 3, BUCUREȘTI, B, RO

(54) PROCEDEU DE OBTINERE A OXIZILOR METALICI SIMPLI ȘI COMPLECȘI

(57) Rezumat:

Invenția se referă la un procedeu de obținere a unor oxizi metalici simpli și complecși. Procedeu conform invenției constă din descompunerea, la temperaturi de minimum 400°C, timp de 1...10 h, a unor precursori de metal-polizaharidă, în care polizaharida este aleasă dintre amidon, metilceluloză, alginat, caragenean, pre-

cursorii fiind obținuți în mediu apos, prin reacția unor surse de metal cu carbohidrați de tip polizaharidă, care funcționează ca agenți de coordonare, încapsulare, stabilizare și template a cationilor metalici.

Revendicări: 1

Cu începere de la data publicării cererii de brevet, cererea asigură, în mod provizoriu, solicitantului, protecția conferită potrivit dispozițiilor art.32 din Legea nr.64/1991, cu excepția cazurilor în care cererea de brevet de invenție a fost respinsă, retrasă sau considerată ca fiind retrasă. Întinderea protecției conferite de cererea de brevet de invenție este determinată de revendicările conținute în cererea publicată în conformitate cu art.23 alin.(1) - (3).



### Procedeu de obtinere a oxizilor metalici simpli si complecsi

Inventia se refera la un procedeu de obtinere al oxizilor metalici simpli si complecsi, printr-o metoda prietenoasa fata de mediu, ce utilizeaza ca materii prime saruri metalice si carbohidrati de tipul polizaharida.

Sunt cunoscute mai multe procedee de sinteza a materialelor oxidice metalice simple si complexe, procedee in stare solida precum metoda ceramica [1] si procedee umede desfasurate in solutie precum metoda precipitarii [2], sol-gel [3] si hidrotermala [4].

Dezavantajele procedeiului ceramic ce utilizeaza materiile prime in stare solida sunt considerabile, derivand din necesitatea utilizarii unor tratamente termice dure de calcinari la temperaturi mai mari de 800° C timp de mai multe ore [5]. Acest procedeu nu poate realiza un control al stoichiometriei produsului oxidic obtinut, acesta fiind neomogen, caracterizat de dimensiuni micronice si de o suprafata specifica mica, improprie unor aplicatii importante precum cataliza.

Procedeele pe cale umeda, desi pot conduce la obtinerea unor pulberi oxidice nanometrice sau submicronice la temperaturi egale sau mai mari de 400°C, pulberi caracterizate in general de valori mari ale suprafetei specifice, au ca principal dezavantaj folosirea ca materii prime si solventi a unor substante toxice si totodata scumpe [6].

Problema care isi propune sa o rezolve prezenta inventie este realizarea unui procedeu de obtinere al oxizilor metalici simpli si complecsi, caracterizati de dimensiuni nanometrice si suprafete specifice mari, prietenos cu mediul, din punct de vedere al materiilor prime si al consumului de energie.

Solutia propusa, inlatura dezavantajele folosirii unor materii prime si solventi, scumpi si toxici, cat si a unor tratamente termice indelungate la temperaturi ridicate.

Utilizarea polizaharidelor in sinteza materialelor oxidice reprezinta o cale de folosire a resurselor naturale bioregenerabile eliminand folosirea materiilor prime scumpe si toxice.

Prezentul procedeu de obtinere al oxizilor metalici simpli si complecsi propune folosirea ca sursa de metale saruri ale acestora de tipul acetat, azotati, sulfati, etc. si a carbohidratilor de tip polizaharida ca agenti de coordinare, incapsulare, stabilizare, gelifiere si template a cationilor metalici, sinteza efectuandu-se in mediu apos iar obtinerea oxizilor realizandu-se la temperaturi egale sau mai mari de 400°C. Oxizii obtinuti au dimensiuni de particule pana la 400 Å si suprafete specifice mai mari de 10 m<sup>2</sup>/g.

Procedeul conform inventiei prezinta urmatoarele avantaje:

- folosirea ca sursa de metal a sarurilor acestora de tipul acetat, azotat, sulfat, etc materii prime ieftine si netoxice;
- folosirea carbohidratilor ca agenti de coordinare, incapsulare, stabilizare, si template a cationilor metalici, materii prime bioregenerabile, biodegradabile si ieftine;
- folosirea carbohidratilor de tip polizaharida;
- folosirea amidonului, metilcelulozei, dextranului, alginatului, carageneanului etc ca polizaharida;
- folosirea ca mediu de reactie a apei;
- obtinerea oxizilor metalici simpli si complecsi la temperaturi egale sau mai mari de 400°C, timp de 1-10 ore;
- obtinerea oxizilor cu dimensiuni nanometrice si suprafete specifice mari;
- procedeul este simplu, rapid si reproductibil.

In continuare se prezinta un exemplu de realizare a inventiei:

1. 3.75 g de  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , 1.0975 g de  $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  si 1 g de amidon sunt introduse in 5-25 ml de  $\text{H}_2\text{O}$ . Solutia se omogenizeaza prin agitare la rece timp de jumatate-3 ore, dupa care temperatura de reactie este ridicata la 100°C, timp de 1-6 ore. Produsul solid obtinut sub forma de gel, este uscat in exicator de vid, apoi calcinat la 800°C timp de 1-5 ore. Oxidul final rezultat este  $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ .

2. 3.75 g de  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , 0.6585 g de  $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ , 0.49735 g  $\text{Ni}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  si 1 g de amidon sunt introduse in 5-25 ml de  $\text{H}_2\text{O}$ . Solutia se omogenizeaza prin agitare la rece timp de jumătate-3 ore, dupa care temperatura de reactie este ridicata la  $100^\circ\text{C}$ , timp de 1-6 ore. Produsul solid obtinut sub forma de gel, este uscat in exicator de vid, apoi calcinat la  $800^\circ\text{C}$  timp de 1-5 ore. Oxidul final rezultat este  $\text{Ni}_{0.4}\text{Zn}_{0.6}\text{Al}_2\text{O}_4$ .

### Referinte

- [1] S.K. Samath, J.F. Cordaro, J. Am. Ceram. Soc., 81 (1998) 649-54
- [2] M.A. Valenzuela, P. Bosch, P. Aguilar-Rios, G. Montoya, I. Schifter, J. Sol-Gel Sci. Technol., 8 (1997) 107
- [3] X. Duan, D. Yuan, X. Wang, H. Xu, J. Sol Gel. Sci. Technol., 35 (2005) 221-24.
- [4] J. Wrzyszc, M. Zawadzki, J. Trwaczyński, H. Grabowska, W. Mišta, Appl. Catal. A: Gen. 210 (2001) 263-269.
- [5] W.S. Hong, L.C. De Jonghe, X. Yang, M.N. Rahaman, J. Am. Ceram. Soc. 78 (1995) 3217.
- [6] S. Kurajica, E. Tkalcec, J. Sipusic, G. Matijasic, I. Brnardic, I. Simcic, J. Sol Gel. Sci. Technol. 48 (2008) 152-60.

### Revendicari

1. Procedeu de obtinere al oxizilor metalici simpli si complecsi caracterizat prin aceea ca oxizii de dimensiuni nanometrice si suprafete specifice ridicate sunt obtinuti prin descompunerea la temperaturi egale sau mai mari de 400°C timp de 1-10 ore a unor precursori metal-polizaharida, unde polizaharida poate fi amidon, metilceluloza, alginat, caragenean etc, precursorul obtinandu-se in mediul apos prin reactia unor surse de metal de tip saruri metalice precum acetati, azotati, sulfati, etc. si agenti de coordinare, incapsulare, stabilizare, gelifiere si template a cationilor metalici de tip polizaharida precum amidon, metilceluloza, dextran, alginat, caragenean etc.