

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 646 171**

51 Int. Cl.:

C01B 32/158 (2007.01)

C01B 33/20 (2006.01)

C01B 33/22 (2006.01)

C01B 33/38 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **22.12.2011 PCT/EP2011/073862**

87 Fecha y número de publicación internacional: **28.06.2012 WO12085239**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **22.12.2011 E 11805515 (1)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **02.08.2017 EP 2655251**

54 Título: **Método para preparar una composición que incluye partículas sintéticas inorgánicas**

30 Prioridad:

23.12.2010 FR 1005096

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
12.12.2017

73 Titular/es:

**UNIVERSITE PAUL SABATIER TOULOUSE III
(50.0%)
118 route de Narbonne
31062 Toulouse Cedex 9, FR y
CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE (CNRS) (50.0%)**

72 Inventor/es:

**LE ROUX, CHRISTOPHE;
MARTIN, FRANÇOIS;
MICOUD, PIERRE y
DUMAS, ANGELA**

74 Agente/Representante:

IZQUIERDO BLANCO, María Alicia

ES 2 646 171 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

Método para preparar una composición que incluye partículas sintéticas inorgánicas**Descripción**

5 **[0001]** La invención se refiere a un método para preparar una composición que comprende partículas minerales sintéticas.

[0002] En todo el texto, el término "partícula inorgánica" significa cualquier partícula inorgánica que no contiene carbono o que lo contiene, en su caso, en forma de carbonato o cianuro.

10 **[0003]** En todo el texto, el término "tratamiento hidrotérmico" significa cualquier tratamiento realizado en presencia de agua a una temperatura predeterminada y a una presión superior a la atmosférica.

15 **[0004]** Muchos minerales tales como boratos o silicatos se usan en varios campos industriales.

[0005] Las partículas minerales de filosilicato, como el talco, se utilizan, por ejemplo, en forma de partículas finas en muchas industrias, tales como caucho, termoplásticos, elastómeros, papel, pintura, barnices, textil, metalúrgica, farmacéutica, cosmética, pesticidas o fertilizantes en la que los filosilicatos como el talco se utilizan, por incorporación en una composición, como un relleno inerte (por su estabilidad química o por la dilución de compuestos activos de mayor costo) o cargas funcionales (por ejemplo, para mejorar las propiedades mecánicas de algunos materiales).

20 **[0006]** El talco natural, que es un silicato de magnesio hidroxilado de la fórmula $Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$, pertenecen a la familia de los filosilicatos. Los filosilicatos consisten en una pila irregular de láminas elementales de estructura cristalina, cuyo número varía de unas pocas unidades a unas pocas decenas de unidades. Entre los filosilicatos (silicatos lamelares), el grupo que comprende en particular talco, mica y montmorillonita se caracteriza porque cada lámina elemental está constituida por la asociación de dos capas de tetraedros situadas a ambos lados de una capa de octaedros. Este grupo corresponde a los filosilicatos 2/1, incluidas las esmectitas. En vista de su estructura, los filosilicatos 2/1 también se conocen como tipo T.O.T. (tetraedro-octaedro-tetraedro).

25 **[0007]** La capa octaédrica de filosilicatos 2/1 se forma de dos planos de iones O^{2-} y OH^- (en la relación molar O^{2-}/OH^- de 2:1). A cada lado de esta capa mediana se colocan las redes bidimensionales de tetraedros, uno de cuyos vértices está ocupado por un oxígeno de la capa octaédrica, mientras que los otros tres son sustancialmente oxígenos coplanares. En esmectitas naturales, por ejemplo, los sitios tetraédricos están generalmente ocupados por iones de Si^{4+} o Al^{3+} , y los sitios octaédricos son más a menudo por los cationes Mg^{2+} , Fe^{2+} , Al^{3+} y/o Fe^{3+} . Una pequeña proporción de los sitios octaédricos y/o tetraédricos de las esmectitas está desocupada y es responsable del déficit catiónico de la red cristalina que forma las capas elementales.

30 **[0008]** Con respecto a talco, para muchas aplicaciones, de alta pureza, alta lamelaridad y la finura de las partículas y un tamaño de partícula estrecha y distribución lamelar, se buscan, ya que pueden ser críticos para la calidad de producto final.

35 **[0009]** Sin embargo, la preparación de una composición pulverulenta a partir de bloques de talco naturales por aplastamiento y el procesamiento de talco hace que sea imposible el control de la pureza, lamelaridad, y tamaño de las partículas de talco obtenidas.

40 **[0010]** En este contexto, el documento WO 2008/009799 proporciona un procedimiento para preparar una composición de talco teniendo al menos un mineral sintético de silicio/germanio-metálico de fórmula $(Si_xGe_{1-x})_4M_3O_{10}(OH)_2$ por tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico de fórmula $(Si_xGe_{1-x})_4M_3O_{11}, nH_2O$, en el estado líquido durante un periodo de 3 días a 30 días y a una temperatura entre 300°C y 600°C. En un proceso de acuerdo con el documento WO 2008/009799, es necesario un tratamiento hidrotermal con una duración de 3 días a 300°C para obtener partículas de talco sintético que tienen un tamaño de partícula que varía de 20 nm a 100 nm o un tratamiento hidrotermal de un periodo de 30 días a 600°C para obtener partículas de talco sintético con un tamaño de partícula de aproximadamente 6 mm, la duración del tratamiento hidrotermal debe ser lo suficientemente grande para permitir la obtención de partículas de cristalinidad y una estabilidad térmica satisfactoria.

45 **[0011]** US 2001/0042704 da a conocer un método de síntesis de filosilicatos mediante tratamiento hidrotérmico a 220°C durante 48 horas a un hidrogel obtenido por adición sucesiva de agua, ácido fluorhídrico, acetato de magnesio y sílice.

50 **[0012]** Por lo tanto, un método de acuerdo con el documento WO 2008/009799 o según el documento US 2001/0042704, aunque permite la preparación de un mineral sintético similar a talco y del que la pureza puede ser controlada, sigue siendo difícil de conciliar con las exigencias industriales altas en términos de eficiencia, efectividad y rentabilidad.

[0013] La invención pretende proporcionar un método mejorado para la preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas.

5 **[0014]** La invención pretende proporcionar un método mejorado para la preparación de una composición que comprende partículas minerales de silicato sintético.

[0015] La invención pretende proporcionar un método mejorado para la preparación de una composición, dicha composición de talco, que comprende partículas minerales filosilicatadas que tienen al menos una fase no hinchable.

10 **[0016]** La invención tiene como objetivo proporcionar un procedimiento para preparar una composición de talco por un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico cuya duración se reduce significativamente en comparación con la duración del tratamiento hidrotérmico requerido en un proceso para preparar una composición de talcos descrita en el estado de la técnica.

15 **[0017]** La invención también tiene por objeto proporcionar un método para preparar una composición que comprende partículas minerales sintéticas se lleva a cabo en el que un tratamiento hidrotérmico de un precursor de hidrogel de dichas partículas minerales sintéticas a una temperatura reducida y/o durante un período reducido.

20 **[0018]** La invención también tiene por objeto proporcionar un método para preparar una composición en la que el talco lleva a cabo un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico a una temperatura reducida y/o para una duración corta y permitiendo obtener una composición de talco que comprende partículas de filosilicato que tienen propiedades mejoradas.

25 **[0019]** La invención tiene como objetivo proporcionar un procedimiento de este tipo cuya implementación es rápida y fácil, y es compatible con las restricciones de explotación industrial.

[0020] La presente invención también tiene como objetivo proporcionar un método para preparar una composición que comprende partículas minerales sintéticas que se pueden utilizar para reemplazar tales composiciones naturales, en una variedad de aplicaciones.

30 **[0021]** La presente invención también tiene por objeto proponer un método talcoso para preparar composiciones que pueden utilizarse para sustituir composiciones de talco naturales en diversas aplicaciones.

35 **[0022]** La invención tiene como objetivo proporcionar un proceso de preparación de composiciones de talco para la preparación de alta pureza mineralógica cristalina de la lógica y que comprende partículas minerales sintéticas que tienen una lamellaridad y un tamaño de partícula fina y una baja dispersión, y una estructura cristalina térmicamente estable.

40 **[0023]** Para hacer esto, la invención se refiere a un Método según la reivindicación 1.

[0024] De hecho, los inventores han encontrado sorprendentemente que un proceso de acuerdo con la invención, en el cual, en una primera etapa, se prepara un precursor de hidrogel de las partículas minerales sintéticas y, en una segunda etapa, un tratamiento hidrotermal del hidrogel mediante la adición de al menos una sal de carboxilato de fórmula R-COOM' como se define anteriormente, hace posible preparar una composición que comprende partículas minerales sintéticas reduciendo considerablemente la duración y/o la temperatura de dicho tratamiento hidrotérmico.

50 **[0025]** Ventajosamente y según la invención, en la fórmula R-COOM' de la sal de carboxilato, R se selecciona de H y grupos de alquilo que tienen menos de 10 átomos de carbono y, en particular, a partir de hidrógeno H-, metilo CH₃- y n-propilo CH₃-CH₂-CH₂-. Así, ventajosamente y según la invención, R se selecciona del grupo que consiste en H, CH₃-, y CH₃-CH₂-CH₂-.

55 **[0026]** Ventajosamente y según la invención, dichas partículas inorgánicas sintéticas son partículas inorgánicas de silicato, es decir partículas que pertenecen a la familia de los silicatos cuya estructura comprende agrupaciones [SiO₄] tetraédricas. En particular, ventajosamente y según la invención, dichas partículas inorgánicas sintéticas son partículas inorgánicas filosilicatadas, es decir partículas que pertenecen a la familia de los filosilicatos, que son por ejemplo parte de micas y talco.

60 **[0027]** En una realización particularmente ventajosa de un método de acuerdo con la invención, dicho precursor de hidrogel de dichas partículas minerales sintéticas es un gel que contiene silicio/germanio-metálico de fórmula (Si_xGe_{1-x})₄M₃O₁₁, n'H₂O:

- M representa al menos un metal divalente que tiene la fórmula Mg_{y(1)}CO_{y(2)} Zn_{y(3)} Cu_{y(4)}Mn_{y(5)}Fe_{y(6)}Ni_{y(7)}Cr_{y(8)}; cada y(i) que representa un número real 8 en el intervalo [0 ; 1], y tal que

65

$$\sum_{i=1}^8 y(i) = 1$$

5

- siendo x un número real en el intervalo [0; 1],
- n' se refiere a una cantidad de molécula(s) de agua asociada con dicho gel silico/germano-metálico.

10 **[0028]** Los inventores han encontrado sorprendentemente que un procedimiento según la invención comprende una primera etapa de preparación de un precursor de hidrogel formado a partir de un gel que contiene silicio/germano-metálico de fórmula $(Si_xGe_{1-x})_4M_3O_{11}, n'H_2O$ y una segunda etapa de tratamiento hidrotérmico de gel que contiene silicio/germano-metálico en la presencia de al menos una sal de carboxilato de la fórmula R-COOM', permite preparar una composición, dicha composición de talco, que comprende partículas minerales de filosilicato, que reduce considerablemente la duración y/o la temperatura de dicho tratamiento hidrotérmico. No se puede dar una explicación clara del sorprendente resultado obtenido por la invención, que permite, en particular, la adición simple de una sal de carboxilato de fórmula R-COOM' en el medio de tratamiento hidrotérmico, un aumento considerable en la velocidad del tratamiento hidrotérmico, de la misma manera que un catalizador. La presencia de al menos una sal de carboxilato de fórmula R-COOM' en el medio de tratamiento hidrotérmico, durante el tratamiento hidrotérmico de dicho gel silico/germano-metálico, parece tener un papel muy importante en la germinación y el crecimiento de dichas partículas minerales de filosilicato, en particular debido a su influencia en el pH del medio de tratamiento hidrotérmico, y esto a través del tratamiento hidrotérmico.

25 **[0029]** Ventajosamente y según la invención, la(s) sal(es) de carboxilato(s) de la fórmula R-COOM' es (son) añadido(s) a dicho medio de tratamiento de manera que tenga, con respecto a dicho precursor de hidrogel, dichas partículas minerales sintéticas. La relación molar de la cantidad de sal de carboxilato a la cantidad de hidrogel en el medio de tratamiento es inicio del tratamiento hidrotérmico. Esta relación R-COOM'/hidrogel puede estar especialmente entre 1,8 y 100, en particular entre 7,2 y 90 y, por ejemplo, entre 40 y 90.

30 **[0030]** En un caso en el que las partículas inorgánicas se preparan de silicato, ventajosamente y según la invención, la(s) sal(es) de carboxilato(s) de la fórmula R-COOM' es (son) añadido(s) a dicho medio de tratamiento para tener, en relación con el silicio, una relación molar R-COOM'/Si de entre 0,1 y 25. Es la relación molar entre la cantidad de sal(es) de carboxilato(s) y la cantidad de átomos de silicio en el medio de tratamiento al comienzo del tratamiento hidrotérmico. Esta relación R-COOM'/Si puede estar especialmente entre 0,45 y 25, en particular entre 1,8 y 22,5 y, por ejemplo, entre 10 y 22,5.

40 **[0031]** Al menos una etapa del tratamiento hidrotérmico se lleva a cabo mediante la adición de al menos una sal de carboxilato de la fórmula R-COOM' en el medio de procesamiento. La(s) sal(es) de carboxilato de la fórmula R-COOM' se pueden añadir al medio de tratamiento hidrotérmico en cualquier momento durante el tratamiento hidrotérmico, por ejemplo, desde el comienzo o, opcionalmente, después de una primera etapa de pretratamiento. Ventajosamente y de acuerdo con la invención, la(s) sal(es) de carboxilato de fórmula R-COOM' se agrega a dicho medio de tratamiento al comienzo de dicho tratamiento hidrotérmico.

45 **[0032]** Se añade ventajosamente y según la invención la(s) sal(es) de carboxilato(s) de la fórmula R-COOM' a dicho medio de tratamiento con el fin de ajustar su pH a un valor entre 8 y 12. Ventajosamente y de acuerdo con la invención, dicho tratamiento hidrotérmico se lleva a cabo a una temperatura entre 150°C y 600°C. La presencia de al menos una sal de carboxilato de fórmula R-COOM' en el medio de tratamiento hidrotérmico, en una concentración (total) de entre 0,2 mol/L y 10 mol/L, aparentemente tiene el efecto de mantener el pH del medio de tratamiento hidrotérmico entre 8 y 12 y evitar una caída en el pH durante el tratamiento hidrotérmico. Los inventores han observado con sorpresa que la presencia de al menos una sal de carboxilato de fórmula R-COOM' en el medio de tratamiento hidrotérmico durante el tratamiento hidrotérmico del gel silico/germano-metálico permite mantener el pH de dicho medio entre 8 y 12. Este efecto sobre el pH es diferente de un efecto tampón. En el caso en el que se usa acetato de sodio, el pH medido durante el tratamiento hidrotérmico es, por ejemplo, 9,47, mientras que el pKa del par de ácido acético/ion de acetato es 4,8.

55 **[0033]** La concentración de sal(es) de carboxilato(s) en el entorno de tratamiento hidrotérmico, está adaptada para permitir la obtención de una composición que comprende partículas minerales sintéticas, después de reducción del tiempo de tratamiento hidrotérmico. Ventajosamente y de acuerdo con la invención, la(s) sal(es) de carboxilato de fórmula R-COOM' se añaden a dicho medio de tratamiento de modo que la concentración de sal(es) de carboxilato de fórmula R-COOM' en el medio de tratamiento se encuentra entre 0,2 mol/L y 10 mol/L.

60 **[0034]** Ventajosamente y según la invención, se proporciona dicho tratamiento hidrotérmico a una temperatura entre 150°C y 600°C, en particular entre 200°C y 400°C. De este modo, llevar a cabo dicho tratamiento hidrotérmico a una temperatura de entre 150°C y 600°C, y en particular entre 200°C y 400°C, en presencia de al menos una sal de carboxilato de fórmula R-COOM' tal como se define previamente, proporciona una composición que comprende partículas inorgánicas sintéticas. Además, gracias a la presencia de al menos una de tales sales de carboxilato, una

65

temperatura de tratamiento hidrotermal de entre 250°C y 350°C, por ejemplo una temperatura de 300°C, es suficiente para obtener una composición, llamada composición de talco, que comprende partículas minerales de filosilicato que tienen al menos una fase no hinchable. Limitando el consumo de energía requerido para su producción, un proceso para preparar una composición de talcos de acuerdo con la invención es, por lo tanto, más respetuoso con el medio ambiente (proceso a baja temperatura) que un proceso para preparar una composición de talcosa perteneciente al estado del arte.

[0035] Ventajosamente y según la invención, la duración del tratamiento hidrotérmico está adaptado para permitir la obtención de dichas partículas minerales sintéticas, en particular de acuerdo con la temperatura a la que se realiza el tratamiento hidrotérmico. Ventajosamente y de acuerdo con la invención, dicho hidrogel se somete a un tratamiento hidrotermal durante un período de entre 30 minutos y 45 días, especialmente entre 1 hora y 15 días, en particular entre 2 horas y 24 horas y más particularmente entre 2 horas y 12 horas.

[0036] Ventajosamente y según la invención se lleva a cabo el tratamiento hidrotérmico de dicho hidrogel, y, en particular gel que contiene silicio/germanio-metálico por medio de una autoclave. Puede ser, por ejemplo, un autoclave formada por una aleación a base de níquel como Hastelloy® (comercializado por Haynes International, Kokomo, EE.UU.) o un autoclave de titanio o posiblemente acero en revestimiento interior en politetrafluoroetileno (PTFE) en un caso en el que la temperatura del tratamiento hidrotérmico no supera los 250°C. Tal autoclave puede tener cualquier contenido, por ejemplo, una capacidad que oscila entre 200 ml y 50 l.

[0037] Ventajosamente y según la invención, se proporciona dicho tratamiento hidrotérmico bajo agitación mecánica. Para este propósito, es posible, por ejemplo, usar un autoclave equipada con una hélice de metal interna.

[0038] Ventajosamente y según la invención, se proporciona dicho tratamiento hidrotérmico bajo presión de vapor saturante y bajo agitación. Ventajosamente y de acuerdo con la invención, en el autoclave, con dicho hidrogel, y en particular con dicho gel silicio/germano-metálico, una cantidad de agua (preferiblemente agua destilada) al menos suficiente para crear, dentro de esta autoclave llevada a la temperatura de tratamiento, una atmósfera de vapor saturante. Ventajosamente y de acuerdo con la invención, dicho tratamiento hidrotérmico se lleva a cabo bajo presión autógena, es decir a una presión al menos igual a la presión de vapor de saturación del agua (presión a la cual la fase de vapor está en equilibrio con la fase líquida). La presión autógena alcanzada en el autoclave durante el tratamiento hidrotérmico depende, por lo tanto, en particular de la temperatura a la que se lleva a cabo dicho tratamiento hidrotermal, del volumen del autoclave y de la cantidad de agua presente. También es posible llevar a cabo el tratamiento hidrotérmico a una presión mayor que la presión de vapor de saturación del agua o la presión autógena, en el recipiente en el que tiene lugar el tratamiento hidrotérmico. Para hacer esto, se inyecta un gas químicamente neutro con respecto a la reacción hidrotérmica en el autoclave o en el recipiente en el que tiene lugar el tratamiento hidrotérmico. Tal gas se selecciona del grupo que consiste en gases inertes (gases nobles), en particular argón, de dinitrógeno (N₂), dióxido de carbono y aire (aire comprimido). De esta manera, ventajosamente y de acuerdo con la invención, el tratamiento hidrotérmico se lleva a cabo a una presión de entre 0,5 MPa (5 bar) y 20 MPa (200 bar).

[0039] Ventajosamente y según la invención se lleva a cabo el tratamiento hidrotérmico con un hidrogel, en particular un gel que contiene silicio/germanio-metálico, líquido que tiene una relación de líquido/sólido de entre 2 y 20, especialmente entre 5 y 15 (la cantidad de líquido que se expresa en cm³, y la cantidad de sólido en gramos). Opcionalmente, si es necesario, agregar a dicho gel silicio/germano-metálico licuado una cantidad de agua adecuada para alcanzar esta relación.

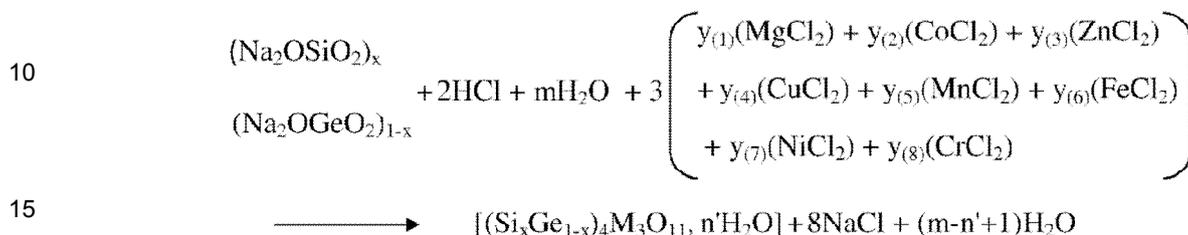
[0040] Además, ventajosamente y según la invención, dichas partículas minerales filosilicatadas tienen al menos una fase no hinchable formada por un apilamiento de capas elementales de tipo filosilicato 2/1 y la fórmula química (Si_xGe_{1-x})₄M₃O₁₀(OH)₂. En particular, en una realización particularmente ventajosa de un método de acuerdo con la invención, dicha fase no hinchable puede estar formada de una pila de hojas elementales de tipo filosilicato 2/1 y la fórmula química M₃Si₄O₁₀(OH)₂, más particularmente de la fórmula química Mg₃Si₄O₁₀(OH)₂.

[0041] Por lo tanto, en una realización particularmente ventajosa de un método de acuerdo con la invención, después de un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico de acuerdo con la invención, se obtiene una composición de talco en forma de una solución coloidal que contiene partículas minerales de filosilicato que tienen al menos una fase no hinchable. Estas partículas minerales sintéticas, en solución en agua pueden estar en un estado más o menos individualizado entre sí, o están organizadas en agregados más o menos gruesos formados por partículas elementales minerales sintéticas, agregados entre sí. El tamaño de partícula de estas partículas elementales puede variar entre unas pocas decenas de nanómetros y aproximadamente diez micrómetros, en particular de acuerdo con la temperatura del tratamiento hidrotermal aplicado, elegido entre 150°C y 600°C, en particular entre 200°C y 400°C..

[0042] Ventajosamente y según la invención, después del tratamiento hidrotérmico, se recupera una composición coloidal que comprende partículas minerales sintéticas y someter dicha composición a una etapa de secado. Dicha composición que comprende partículas minerales sintéticas obtenidas mediante un proceso de acuerdo con la invención se puede secar mediante cualquier técnica de secado en polvo. Ventajosamente y de acuerdo con la

invención, después de dicho tratamiento hidrotérmico, se secan dichas partículas minerales sintéticas obtenidas por liofilización. El secado también se puede llevar a cabo por medio de un horno, por ejemplo a una temperatura del orden de 60°C, durante 12 horas a 48 horas, o incluso bajo irradiación de microondas.

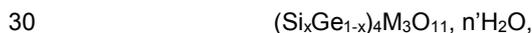
5 **[0043]** En una realización ventajosa de un método de acuerdo con la invención, se prepara dicho gel silicio/germano-metálico por coprecipitación de acuerdo con la reacción:



m, n 'y (m-n'+1) siendo números enteros positivos.

20 **[0044]** Dicho gel que contiene silicio/germano-metálico se puede preparar por una reacción de coprecipitación utilizando al menos un cloruro de metal de la fórmula MCl_2 . Se obtiene un gel que contiene silicio/germano-metálico está en forma de una solución coloidal que comprende partículas de fórmula $(\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x})_4\text{M}_3\text{O}_{11}, n'\text{H}_2\text{O}$. Es entonces necesario sustituir sustancialmente por completo el cloruro de sodio obtenido durante esta coprecipitación con al menos una única sal de carboxilato de fórmula $\text{R-COOM}'$, antes de llevar a cabo el tratamiento hidrotérmico de dicho gel de sílice/germano-metálico. Ventajosamente y de acuerdo con la invención, se añade al menos una sal de carboxilato de fórmula $\text{R-COOM}'$ a dicho medio de tratamiento en sustitución equimolar de NaCl .

[0045] El gel que contiene silicio/germano-metálico es altamente hidratado y en la fórmula química:



se refiere a una gran cantidad de moléculas de agua asociadas con este gel silicio/germano-metálico y cuyo valor exacto puede ser variable y desconocido.

35 **[0046]** En una realización particularmente ventajosa de un método de acuerdo con la invención, dicho gel contiene silicio/germano-metálico tiene la fórmula $\text{M}_3\text{Si}_4\text{O}_{11}, n'\text{H}_2\text{O}$. En este caso, dicho gel silicio/germano-metálico de fórmula $\text{M}_3\text{Si}_4\text{O}_{11}, n'\text{H}_2\text{O}$ es un gel silico-metálico.

40 **[0047]** Ventajosamente y según la invención, de forma consecutiva a dicho tratamiento hidrotérmico, el secado de dichas partículas minerales sintéticas incluyendo dichas partículas filosilicatadas obtenidas. Ventajosamente y de acuerdo con la invención, después de dicho tratamiento hidrotérmico, se realiza el secado de las partículas minerales sintéticas, en particular dichas partículas de filosilicatos, obtenidas por liofilización. Esta técnica de secado de las partículas minerales de filosilicato contenidas en una composición de talcosa obtenida mediante un proceso de acuerdo con la invención hace posible, en particular, obtener partículas elementales individualizadas y evitar una etapa de trituración de dichas partículas.

45 **[0048]** Una composición de talco que comprende partículas inorgánicas filosilicatadas que tienen al menos una fase no hinchable, preparada por un procedimiento según la invención tiene ventajosamente, en la difracción de rayos X, difracción de picos característicos de talco, en particular un pico de difracción característica de un plano (001) ubicado a una distancia entre 9,30 Å y 10,25 Å. Ventajosamente y según la invención, dicha composición que comprende partículas minerales filosilicatadas presenta, en difracción de rayos X, los picos de difracción característica siguientes:

- 55 - un plano (001) situado a una distancia entre 9,50 Å y 10,25 Å;
- un plano (020) situado a una distancia entre 4,50 Å y 4,61 Å;
- un plano (003) situado a una distancia entre 3,10 Å y 3,20 Å;
- un plano (060) situado a una distancia de entre 1,50 Å y 1,55 Å.

60 **[0049]** Además, ventajosamente y según la invención, dicha composición de talco comprende además al menos una fase de expansión.

[0050] Además, ventajosamente y según la invención, dicha fase de expansión se forma de un apilamiento de capas elementales de tipo filosilicato 2/1 y al menos un espacio de capa intermedia entre dos hojas elementales consecutivos, dicha fase hinchable que tiene para fórmula química:



- X^{+r} es al menos un catión, dicho catión de capa intermedia presente en(los) espacio(s) de capa intermedia de dichas hojas elementales de dicha fase mineral hinchable
- r es un número real en el intervalo $[0; 3]$ que designa una carga catiónica del catión X^{+r} ,
- ϵ es un número real en el intervalo $[0; 3]$ que designa un déficit catiónico de las hojas elementales de dicha fase hinchable,
- ϵ' es un número real en el intervalo $[0; 3]$ que designa una cantidad de catión de capa intermedia X^{+r} presente en el (los) espacio(s) de capa intermedia de dichas láminas elementales de dicha fase mineral hinchable, y
- n se refiere a un número de molécula(s) de agua asociada(s) con dicha fase hinchable.

5
10 **[0051]** En la fórmula química de $Si_4M_{3-\epsilon}O_{10}(OH)_2, (X^{+r})_{\epsilon} \cdot nH_2O$ en la fase hinchable, n se refiere a unas pocas moléculas de agua unidas a la fase hinchable que puede ser, en particular presente en el (los) espacio(s) de capa intermedia, opcionalmente en combinación con el catión de capa intermedia X^{+r} .

15 **[0052]** En particular, ventajosamente y según la invención, dicha composición comprende partículas de talco minerales filosilicatadas formadas de una interstratificación entre dicha hinchazón de fase y dicha fase no hinchable. Una composición de talco que comprende partículas minerales de filosilicato formadas por tal interstratificación puede obtenerse, por ejemplo, después de un tratamiento hidrotérmico llevado a cabo a una temperatura entre 150°C y 300°C.

20 **[0053]** Tal composición de talco que comprende partículas inorgánicas filosilicatadas formadas de una interstratificación entre una fase de expansión y una fase no hinchable puede entonces ser sometida a un tratamiento térmico en seco llevado a cabo a una presión de menos de 5 bar (0,5 MPa), a una temperatura entre 300°C y 600°C durante 1 a 15 horas, especialmente durante 2 a 10 horas, por ejemplo un tratamiento térmico de 4 horas a una temperatura entre 500°C y 550°C.

25 **[0054]** Por lo tanto, en una realización alternativa de un método de acuerdo con la invención, después de dicho tratamiento hidrotérmico, un tratamiento térmico en seco se lleva a cabo a una temperatura entre 300°C y 600°C. Tal tratamiento térmico anhidro permite convertir al menos parcialmente una composición de talco que comprende partículas minerales de filosilicato formadas por interstratificación entre una fase hinchable y una fase no hinchable en una composición de talco que comprende partículas inorgánicas de filosilicato solo formadas por una fase no hinchable de fórmula química $(Si_xGe_{1-x})_4M_3O_{10}(OH)_2$, y especialmente de la fórmula química de $Si_4M_3O_{10}(OH)_2$.

30 **[0055]** La invención también se refiere a un método para preparar una composición, dicha composición de talco, comprendiendo partículas minerales filosilicatadas caracterizadas en combinación por la totalidad o algunas de las características mencionadas anteriormente o posteriormente.

35 **[0056]** Otros objetos, características y ventajas de la invención aparecerán de la lectura de la descripción y ejemplos que siguen y que se refieren a:

- 40 - la figura 1 adjunta representa un difractograma correspondiente al análisis de difracción de rayos X realizado en una composición obtenida por un método de acuerdo con la invención, y
- la figura 2 adjunta muestra un difractograma correspondiente al análisis de difracción de rayos X realizado en una composición obtenida mediante un método de acuerdo con la invención.

45 A/ - PROTOCOLO GENERAL PARA LA PREPARACIÓN DE UNA COMPOSICIÓN QUE COMPRENDE PARTÍCULAS MINERALES SINTÉTICAS DE ACUERDO CON LA INVENCION

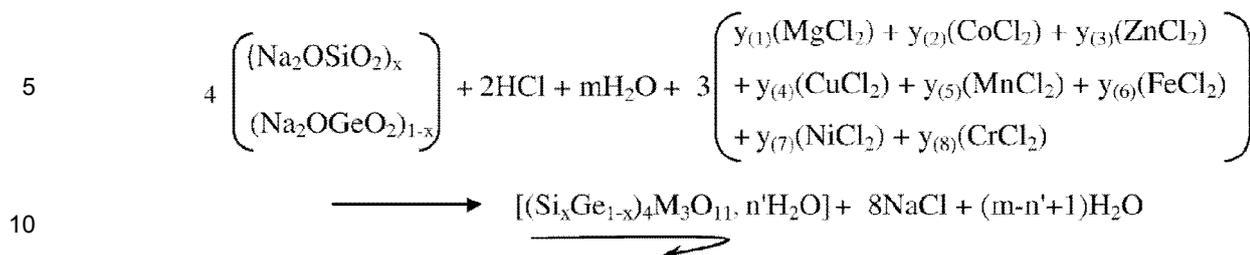
50 **[0057]** La preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención comprende una primera etapa de preparación de un precursor de hidrogel de dichas partículas minerales sintéticas y una etapa de tratamiento hidrotérmico de este precursor de hidrogel en la que se añade al menos una sal de carboxilato de la fórmula R-COOM.

55 **[0058]** Se describe más particularmente en lo sucesivo, un protocolo para la preparación de una composición que comprende partículas minerales filosilicatadas, incluyendo partículas de talco.

1/- Preparación de un gel que contiene silicio/germanio-metálico

60 **[0059]** El gel que contiene silicio/germanio-metálico se pueden preparar por una reacción de coprecipitación que implica, como reactivo, al menos un cloruro de metal de la fórmula MCl_2 . Esta reacción de coprecipitación proporciona un gel si- lico/germanio y hidrato de metal que tiene la estequiometría de talco (4 Si por 3 M, M que tiene la fórmula $Mg_{y(1)}Co_{y(2)}Zn_{y(3)}Cu_{y(4)}Mn_{y(5)}Fe_{y(6)}Ni_{y(7)}Cr_{y(8)}$).

65 **[0060]** El gel que contiene silicio/germanio-metálico se prepara mediante una coprecipitación de acuerdo con la siguiente ecuación de reacción:



[0061] Esta reacción se lleva a cabo a partir de:

1. Una solución acuosa de metasilicato de sodio penta-hidratado o una solución acuosa de metagermanato de sodio, o una mezcla de estas dos soluciones en la relación molar $x:(1-x)$,
2. una solución de cloruro de metal se preparó con una o más sal(es) de metal (o metales) (en forma de cristales higroscópicos) diluido(s) en agua destilada, y
3. una solución de ácido clorhídrico 1N.

[0062] La preparación de este gel que contiene silicio/germanio-metálico se lleva a cabo de acuerdo con el siguiente protocolo:

1. se mezcla soluciones mixtas de ácido clorhídrico y cloruro de metal (o metales),
2. la mezcla se añade a la solución de metasilicato sódico y/o metagermanato de sodio; se forma el gel de coprecipitación instantáneamente,
3. el gel se recupera después de la centrifugación (entre 3.000 y 7.000 rpm, durante 5 a 20 minutos, por ejemplo 3.500 revoluciones por minuto durante 15 minutos) y la eliminación del sobrenadante (solución de sodio formado),
4. el gel se lava con agua, especialmente con agua destilada o ósmosis inversa, mediante la realización de al menos dos ciclos de lavado/centrifugación,
5. se recupera el gel después de la centrifugación.

[0063] Al final de esta primera fase, se obtiene un gel que contiene silicio/germanio-metálico $(\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x})_4\text{M}_3\text{O}_{11}, n'\text{H}_2\text{O}$, fuertemente hidratado y de consistencia gelatinosa. Este gel puede tener un comportamiento tixotrópico, es decir, pasar de un estado viscoso a un líquido cuando se agita, a continuación, a recuperar su estado original después de un tiempo de descanso.

[0064] El gel, altamente hidratado, recuperado después de la centrifugación se puede secar, por ejemplo en una estufa (60°C, 2 días), por liofilización, o por secado bajo irradiación de microondas antes de someterse a un tratamiento hidrotérmico. Secar el gel que contiene silicio/germanio-metálico $(\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x})_4\text{M}_3\text{O}_{11}, n'\text{H}_2\text{O}$ permite obtener un polvo que puede ser almacenado, y se rehidrata antes de su uso para someterse a un tratamiento hidrotérmico según invención.

2/ - Tratamiento hidrotérmico del gel que contiene silicio/germanio-metálico

[0065] El gel que contiene silicio/germanio-metálico $(\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x})_4\text{M}_3\text{O}_{11}, n'\text{H}_2\text{O}$ secado o no, tal como se obtuvo anteriormente, se somete a un tratamiento hidrotérmico a una temperatura entre 150°C y 600°C, en particular entre 200°C y 400°C.

[0066] Para hacer esto:

1. se coloca el gel, previamente secado o en forma licuada en un reactor/autoclave;
2. se añade bajo agitación una solución que comprende al menos una sal de carboxilato de la fórmula R-COOM (en forma hidratada o anhidra) a dicho gel,
3. se ajusta opcionalmente la relación líquido/sólido a un valor entre 2 y 20, especialmente entre 5 y 15 (la cantidad de líquido que se expresa en cm^3 , y la cantidad de sólido en gramos)
4. el reactor/autoclave se colocó dentro de un horno, a una temperatura de reacción predeterminada (establecida entre 150°C y 600°C) durante todo el período de tratamiento.

[0067] Se puede opcionalmente secar el gel después de la adición de la solución que comprende la(s) sal(es) de carboxilato(s) de la fórmula R-COOM' de manera que puede por ejemplo almacenarlo hasta el momento del tratamiento hidrotérmico. A continuación, simplemente habrá que mezclar el gel seco ya que comprende la(s) sal(es) de carboxilato(s) con agua a fin de establecer la relación líquido/sólido deseada.

[0068] Los inventores han encontrado que la temperatura del tratamiento hidrotérmico influye en la granulometría de

las partículas obtenidas. Cuanto menor sea esta temperatura, menor serán las partículas sintetizadas pequeñas (del orden de varias decenas de nanómetros a 300°C, en contra de diez micrómetros para temperaturas más altas).

5 **[0069]** Además, los inventores han observado que una duración relativamente corta del tratamiento hidrotérmico es suficiente para permitir una conversión de la masa gelatinosa inicial de material sólido cristalizado y térmicamente estable.

10 **[0070]** Durante el tratamiento hidrotérmico, el gel que contiene silicio/germanio-metálico pierde gradualmente su consistencia similar a gel para adoptar una estructura cristalina de partículas en la que la cristalinidad se aumenta con el tiempo. Esta cristalización progresiva del material se encontró por análisis en difracción de rayos X, resultando en los difractogramas correspondientes por la rápida aparición de picos característicos que son refinados y rápidamente intensificados durante el tratamiento.

15 **[0071]** Después del tratamiento hidrotérmico, una composición de talco coloidal que comprende partículas inorgánicas filosilicatadas en suspensión en agua. Después de este tratamiento hidrotérmico, el gel contenido en el reactor se recupera por centrifugación (3.000 a 7.000 rpm, durante 5 a 20 minutos) seguido de eliminación del sobrenadante. La solución sobrenadante contiene dicha(s) sal(es) de fórmula R-COOM' y puede ser almacenado con el fin de recuperar esta/estas sal(es) del carboxilato y reciclarla(s).

20 **[0072]** El gel recuperado se lava preferiblemente con agua, especialmente con agua destilada o de ósmosis inversa, mediante la realización de al menos dos ciclos de lavado/centrifugación.

[0073] La composición de sólido recuperado después de la última centrifugación se puede secar entonces:

25 - en un horno a 60°C durante 12 horas, o,
- por liofilización, por ejemplo, en un liofilizador de tipo CHRIST ALPHA® 1-2 LD Plus, durante 48 horas a 72 horas.

30 **[0074]** Se obtiene al final una composición sólida dividida cuyo color depende de la naturaleza del cloruro utilizado metálico para la preparación del gel que contiene silicio/germanio-metálico (y también, si es apropiado, las proporciones respectivas de estos cloruros metálicos).

35 **[0075]** Las partículas minerales filosilicatadas contenidas en una composición de talco obtenida por un procedimiento según la invención presentan excelentes propiedades en términos de pureza, cristalinidad y estabilidad térmica, y, por una duración de tratamiento hidrotérmico reducido significativamente con relación al tiempo de tratamiento hidro-térmico anteriormente requerido en el método de preparación de la composición de talco conocida.

40 **[0076]** Consecutivamente para el tratamiento hidrotérmico, la composición de talco obtenida opcionalmente puede ser sometida a un tratamiento térmico en seco llevado a cabo a una presión de menos de 5 bar (0,5 MPa) a una temperatura entre 300°C y 600°C durante 1 a 15 horas, especialmente si comprende partículas minerales filosilicadas formadas de interestratificación entre una fase de expansión y una fase no hinchable. Tal tratamiento térmico en seco se puede realizar en un caso en el que se desea convertir una composición de talco que comprende partículas inorgánicas formadas de una interestratificación entre una fase de expansión y una fase no hinchable en una composición que comprende partículas de talco minerales filosilicatadas solamente formadas de una fase no hinchable.

B/ - ANÁLISIS Y CARACTERIZACIÓN ESTRUCTURAL

50 **[0077]** Los resultados de análisis de composiciones que incluyen partículas inorgánicas sintéticas que pueden obtenerse mediante un procedimiento según la invención se describen a continuación.

55 **[0078]** Se reportan en adelante los resultados del análisis de una composición de talco obtenida siguiendo el protocolo descrito anteriormente. Estos resultados confirman que la invención permite con eficacia dirigir la formación de partículas filosilicatadas minerales sintéticas que tienen características estructurales (en particular la cristalinidad y lamelaridad) muy similares a las de talcos naturales. También muestran que, en particular por la elección de la temperatura y el tiempo de aplicación, la invención permite sintetizar de una manera extremadamente simple, partículas minerales sintéticas que contienen silicio/germanio-metálico, estable y puro, que tiene un tamaño y las características cristalinas definidas y predecibles.

60 **[0079]** Los análisis se llevaron a cabo en particular por las observaciones de difracción de rayos X y microscopía electrónica. Los datos se presentan en la figura adjunta y los ejemplos 1 a 11, y se discuten más adelante.

1/ - Análisis en difracción de rayos X

65 **[0080]** en la difracción de rayos X, el talco natural es por ejemplo conocido por tener en particular cuatro picos de

difracción característicos:

- para el plano (001), un pico situado a una distancia de 9,35 Å ;
- para el plano (020), un pico situado a 4,55 Å ;
- para el plano (003), un pico situado a 3,14 Å ;
- para el plano (060), un pico situado a 1,52 Å.

[0081] La Figura 1 muestra los resultados de análisis realizados por difracción de rayos X en una composición de talco sintético, de fórmula $\text{Si}_4\text{Mg}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$, preparado de acuerdo con el método descrito anteriormente (con para catión octaedro, Mg^{2+}), después de la precipitación de un gel silico-metálico seguido por sustitución de NaCl con acetato de sodio a una concentración de 1 mol/L y con tratamiento hidrotérmico a 300°C durante 6 horas.

[0082] La Figura 2 muestra los resultados de análisis realizados por difracción de rayos X en una composición de silicato de zinc sintético de la fórmula Zn_2SiO_4 , después de la precipitación de un precursor de hidrogel de dichas partículas de silicato de zinc, seguido de un acetato de sodio se añade a una concentración de 4 mol/L y un tratamiento hidrotérmico a 250°C durante 6 horas.

[0083] En cada uno de los difractogramas de rayos X de las Figuras 1 y 2 se muestra la intensidad de la señal (recuentos por segundo) frente al ángulo de difracción 2θ .

[0084] En particular, el difractograma mostrado en la Figura 1 presente en valores de ángulo 2θ de 5,72 grados; 10,60 grados; 21,65 grados; 22,59 grados; 32,90 grados; 40,10 grados; 41,97 grados; 71,73 grados; 85,40 grados correspondientes a las señales de talco.

[0085] Los difractogramas de rayos X mostrados en las Figuras 1 y 2 se han registrado en una unidad de CPS 120 comercializado por la empresa INEL (Artenay, Francia). Se trata de un difractómetro de detector curva que permite una detección en tiempo real sobre un área angular de 120°. El voltaje de aceleración utilizado fue 40 kV y corriente de 25 mA. La ecuación de Bragg dando la equidistancia estructural es: $d_{hkl}=0,89449/\sin\theta$ (con el uso de un anticátodo de cobalto).

[0086] El análisis de difracción de rayos X confirma que existe una similitud estructural entre las partículas minerales filosilicatadas de composiciones de talco preparadas de acuerdo con la invención y las partículas de talco natural y entre las partículas minerales de silicato de zinc preparadas de acuerdo con la invención y las partículas de silicato de zinc natural.

[0087] En particular, los picos de difracción 3, 4 y 5 (figura 1) que corresponden respectivamente a los planos (020), (003) y (060) tienen posiciones que coinciden exactamente con los de los picos de difracción de referencia para el talco natural.

[0088] En cuanto a las composiciones de talco preparadas, sólo la posición de los picos de difracción 1 y 2 del plano (001) difiere ligeramente de la posición del pico de referencia (9,60 a 10,25 Å, en lugar de 9,35 Å). Esta diferencia de valor se explica principalmente:

- un tamaño granulométrico nanométrico a diferencia del de talcos naturales,
- mediante una ligera hidratación residual de partículas minerales filosilicatadas que aumenta la distancia inter-reticular (001) debido a la presencia de moléculas de agua intercaladas entre las capas de talco y,
- opcionalmente, por la naturaleza de los cationes octaédricos de la red cristalina.

[0089] Sin embargo, hay que señalar que la diferencia resultante de la humedad residual disminuye ligeramente más largo tiempo de reacción y un secado adicional.

[0090] Por último, la anchura del pico a media altura de los planos (001), (020), (003) y (060) muestra la buena cristalinidad de las partículas minerales silicio/germanio-metálicas de las composiciones de talco de la invención.

2/ - Observaciones microscópicas y la evaluación del tamaño de partícula

[0091] Teniendo en cuenta los polvos muy finos que pueden ser las composiciones de talco de la invención, el tamaño y distribución por tamaño de las partículas inorgánicas filosilicatadas que las componen se evaluaron mediante la observación por microscopía electrónica de barrido y el efecto de campo y microscopía electrónica de transmisión.

[0092] Se observa que el tamaño de partícula de las partículas elementales es de entre 20 nm y 100 nm.

[0093] Por otro lado, las mediciones de área de superficie específica (área de superficie de las partículas con respecto a una unidad de masa) de las partículas inorgánicas sintetizadas, determinadas por el método BET por la cantidad de argón adsorbido en la superficie de dichas partículas con el fin de formar una capa monomolecular que

5 cubre completamente dicha superficie (medida según el método BET, norma AFNOR X 11 - 621 y 622) se realizaron. Se hace notar que el área de superficie específica de las partículas minerales filosilicatadas incluidas en una composición de talco obtenida mediante un procedimiento según la invención (después de la precipitación de un metal de gel de sílice y sustitución de NaCl de acetato de sodio a una concentración de 1 mol/L y tratamiento hidrotérmico a 300°C durante 6 horas y luego el secado por congelación) es de 175 m²/g.

10 **[0094]** Un tal valor de área superficial específica, mientras que la superficie específica de un talco natural es de aproximadamente 20 m²/g, puede en particular ser indicativo de un tamaño muy pequeño de partículas del carácter laminar de las partículas sintetizadas, del estado dividido de partículas (no aglomeradas) y, opcionalmente, una exfoliación de las hojas elementales que forman dicha fase no hinchable.

15 **[0095]** Los ejemplos 1 a 11 que siguen ilustran el método de preparación de acuerdo con la invención y las características estructurales de las composiciones que comprenden partículas minerales sintéticas, y en composiciones de talco particulares que comprenden partículas minerales filosilicatadas, así obtenidas.

EJEMPLO 1 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención

20 **[0096]** Se prepara una solución acuosa de acetato de sodio trihidratado CH₃-COONa.3H₂O a una concentración de 1,3 M. La dispersión de 2 g de metal de gel de sílice previamente secado por liofilización en 27 ml de esta solución de acetato de sodio. La colocación de la suspensión en un reactor en un titanio cerrado. Se coloca el reactor de titanio en un horno a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

25 **[0097]** Después de enfriarse a temperatura ambiente, se abrió el reactor y la suspensión que comprende el polvo blanco se centrifuga. La solución de acetato de sodio sobrenadante se recupera y puede reciclarse.

30 **[0098]** La pulpa blanca separada de la solución de etilo se lava 2 veces con agua desionizada y después se seca en un horno calentado a una temperatura de 130°C durante 12 h. Se obtiene 1,13 g de sólido de color blanco después del secado.

[0099] En la figura 1 se muestra el difractograma de rayos X de la composición de talco sintético, de fórmula Si₄Mg₃O₁₀(OH)₂ obtenida de este modo.

35 **[0100]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- un plano (001) situado a una distancia de 9.717 Å (I = 100) ;
- un plano (020) situado a una distancia de 4.605 Å (I = 9) ;
- un plano (003) situado a una distancia de 3.157 Å (I = 50) ;
- un plano (060) situado a una distancia de 1.525 Å (I = 5).

[0101] La intensidad I de los picos de los datos correspondientes se normaliza al pico más intenso del difractograma, la intensidad del pico más intenso siendo considerada igual a 100.

45 **[0102]** Los picos de difracción 2, 3, 4 y 5 se muestran en el difractograma en la Figura 1 corresponden, respectivamente, al plano (001), al plano (020), al plano (003) y al plano (060) identificados en adelante anteriormente.

50 **[0103]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco también tiene un pico de difracción 1 correspondiente a un plano (001) situado a una distancia de 17,267Å (I = 10) representativo de una fase de expansión.

EJEMPLO 2 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención

55 **[0104]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que se utiliza una solución acuosa de acetato de sodio trihidratado a una concentración de 0,2 M y se proceda a un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (previamente liofilizado) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

60 **[0105]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- un plano (001) situado a una distancia de 9.930 Å (I = 100) ;
- un plano (020) situado a una distancia de 4.535 Å (I = 65) ;
- un plano (003) situado a una distancia de 3.178 Å (I = 60) ;
- un plano (060) situado a una distancia de 1.521 Å (I = 32).

[0106] En el difractograma de rayos X de esta composición de talco, el pico de difracción correspondiente al plano (001) tiene un hombro ligero representativo de una fase inflable presente en proporciones muy pequeñas con respecto a la fase no hinchable.

5 EJEMPLO₃ - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención

10 **[0107]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que un trihidrato de acetato de sodio acuoso a una concentración de solución 2 M y la realización de un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (secado previamente por liofilización) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

15 **[0108]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- un plano (001) situado a una distancia de 9.704 Å (I = 92) ;
- un plano (020) situado a una distancia de 4.548 Å (I = 100) ;
- un plano (003) situado a una distancia de 3.164 Å (I = 74) ;
- un plano (060) situado a una distancia de 1.521 Å (I = 57).

20 **[0109]** En el difractograma de rayos X de esta composición de talco, el pico de difracción correspondiente al plano (001) tiene un hombro ligero representativo de una fase hinchable presente en proporciones muy pequeñas con respecto a la fase no hinchable.

25 EJEMPLO 4 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención

30 **[0110]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que se utiliza una solución acuosa de acetato de sodio trihidratado en una concentración de 1,3 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (previamente secado por irradiación con microondas) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

35 **[0111]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- un plano (001) situado a una distancia de 9.715 Å (I = 100) ;
- un plano (020) situado a una distancia de 4.552 Å (I = 9) ;
- un plano (003) situado a una distancia de 3.149 Å (I = 70) ;
- un plano (060) situado a una distancia de 1.526 Å (I = 9).

40 **[0112]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco también tiene un pico de difracción correspondiente a un plano (001) situado a una distancia de 18,383Å (I = 10) representativa de una fase de expansión.

45 EJEMPLO 5 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención

50 **[0113]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que una solución acuosa de acetato de sodio trihidratado en una concentración de 1,3 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (previamente secado en un horno) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

[0114] El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- un plano (001) situado a una distancia de 10.088 Å (I = 100) ;
- un plano (020) situado a una distancia de 4.542 Å (I = 50) ;
- un plano (003) situado a una distancia de 3.150 Å (I = 52) ;
- un plano (060) situado a una distancia de 1.523 Å (I = 25).

60 **[0115]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco también tiene un pico de difracción correspondiente a un plano (001) situado a una distancia de 18,224Å (I = 25) representativa de una fase de expansión.

EJEMPLO 6 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención

65 **[0116]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que una solución de trihidrato de acetato de sodio acuoso a una concentración de 4 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene

silicio/germanio-metálico (secado previamente por irradiación con microondas) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

5 **[0117]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- 10
- un plano (001) situado a una distancia de 9.699 Å (I = 100) ;
 - un plano (020) situado a una distancia de 4.557 Å (I = 9) ;
 - un plano (003) situado a una distancia de 3.161 Å (I = 30) ;
 - un plano (060) situado a una distancia de 1.522 Å (I = 8).

[0118] El difractograma de rayos X de esta composición de talco también tiene un pico de difracción correspondiente a un plano (001) situado a una distancia de 20.239 Å (I = 5) representativa de una fase de expansión.

15 **[0119]** Ejemplo 7 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención.

20 **[0120]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que una solución de trihidrato de acetato de sodio acuoso a una concentración de 4 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (secado previamente en un horno) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

[0121] El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- 25
- un plano (001) situado a una distancia de 9.683 Å (I = 100) ;
 - un plano (020) situado a una distancia de 4.566 Å (I = 10) ;
 - un plano (003) situado a una distancia de 3.153 Å (I = 35) ;
 - un plano (060) situado a una distancia de 1.524 Å (I = 10).

30 **[0122]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco también tiene un pico de difracción correspondiente a un plano (001) situado a una distancia de 19,840 Å (para I = 9) representativa de una fase de expansión.

[0123] Ejemplo 8 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención.

35 **[0124]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que una solución acuosa de acetato de sodio trihidratado en una concentración de 1,3 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (previamente liofilizado) a una temperatura de 350°C durante 2 horas.

40 **[0125]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- 45
- un plano (001) situado a una distancia de 9.899 Å (I = 50) ;
 - un plano (020) situado a una distancia de 4.536 Å (I = 100) ;
 - un plano (003) situado a una distancia de 3.155 Å (I = 50) ;
 - un plano (060) situado a una distancia de 1.515 Å (I = 65).

EJEMPLO 9 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención

50 **[0126]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que una solución acuosa de acetato de potasio CH₃-COOK a una concentración de 1,3 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel silicio/germanio-metálico (previamente secado por liofilización) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

55 **[0127]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- 60
- un plano (001) situado a una distancia de 10.241 Å (I = 100) ;
 - un plano (020) situado a una distancia de 4.517 Å (I = 44) ;
 - un plano (003) situado a una distancia de 3.315 Å (I = 45) ;
 - un plano (060) situado a una distancia de 1.515 Å (I = 20).

[0128] El difractograma de rayos X de esta composición de talco también tiene un pico de difracción correspondiente a un plano (001) situado a una distancia de 12.562 Å (I = 20) representativa de una fase de expansión.

65 EJEMPLO 10 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la

invención

5 **[0129]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que una solución acuosa de formiato de sodio HCOONa a una concentración de 1,3 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (previamente se secó por congelación) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

[0130] El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- 10
- un plano (001) situado a una distancia de 10.029 Å (I = 90) ;
 - un plano (020) situado a una distancia de 4.520 Å (I = 90) ;
 - un plano (003) situado a una distancia de 3.170 Å (I = 100) ;
 - un plano (060) situado a una distancia de 1.520 Å (I = 70).

15 **[0131]** En el difractograma de rayos X de esta composición de talco, el pico de difracción correspondiente al plano (001) tiene un hombro representativo de una fase inflable presente en pequeña proporción en comparación con la fase no hinchable.

20 **[0132]** EJEMPLO 11 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención.

25 **[0133]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que una solución acuosa de butirato de sodio CH₃-CH₂-CH₂-COONa en una concentración de 1 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (previamente secado por liofilización) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

[0134] El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- 30
- un plano (001) situado a una distancia de 10.025 Å (I = 100) ;
 - un plano (020) situado a una distancia de 4.510 Å (I = 18) ;
 - un plano (003) situado a una distancia de 3.168 Å (I = 75) ;
 - un plano (060) situado a una distancia de 1.519 Å (I = 15).

35 **[0135]** En el difractograma de rayos X de esta composición de talco, el pico de difracción correspondiente al plano (001) tiene un hombro representativo de una fase hinchable presente en pequeña proporción en comparación con la fase no hinchable.

EJEMPLO COMPARATIVO 12

40 **[0136]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que el magnesio se sustituye por acetato de sodio por el acetato de CH₃-COOMg.4H₂O a una concentración de 1,3 M y se lleva a cabo un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (previamente secado por liofilización) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

45 **[0137]** El difractograma de rayos X de la composición resultante no tiene pico de difracción correspondiente a los picos de difracción de talco.

EJEMPLO COMPARATIVO 13

50 **[0138]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 realizándose la sustitución de acetato de sodio por acetato de calcio CH₃-COOCa. H₂O a una concentración de 1.3M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel silicio/germanio-metálico (previamente secado por liofilización) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

55 **[0139]** El difractograma de rayos X de la composición resultante no tiene pico de difracción correspondiente a los picos de difracción de talco.

EJEMPLO COMPARATIVO 14

60 **[0140]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 en el que el acetato de sodio se reemplazó con hidrógeno carbonato de sodio NaHCO₃ (comúnmente conocido como "bicarbonato de sodio") a una concentración de 1,3 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germanio-metálico (previamente secado por liofilización) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

65 **[0141]** El difractograma de rayos X de la composición resultante no tiene pico de difracción correspondiente a los picos de difracción de talco.

EJEMPLO COMPARATIVO 15

5 **[0142]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 realizándose la sustitución de acetato de sodio por carbonato de sodio Na_2CO_3 a una concentración de 1,3 M y se procede a un tratamiento hidrotérmico de un gel silicio/germano metálico (previamente secado por liofilización) a una temperatura de 300°C durante 6 horas.

[0143] El difractograma de rayos X de la composición resultante no tiene pico de difracción correspondiente a los picos de difracción de talco.

10 **[0144]** Ninguna de las condiciones de tratamiento hidrotérmico se describen en los Ejemplos Comparativos 12-15 permite obtener, después de un tratamiento hidrotérmico a una temperatura de 300°C durante 6 horas en presencia de una sal diferente de una sal de carboxilato de fórmula $\text{R-COOM}'$, una composición que comprende partículas de talco filosilicatadas inorgánicas.

15 EJEMPLO COMPARATIVO 16

[0145] Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 1 pero en ausencia de cualquier sal de carboxilato. Se requiere un tratamiento hidrotérmico de un gel que contiene silicio/germano-metálico (previamente secado en un horno) a una temperatura de 350°C durante 18 horas para obtener una composición de talco.

20 **[0146]** El difractograma de rayos X de esta composición de talco exhibe picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de talco, y en particular, los siguientes picos de difracción característicos:

- 25 - un plano (001) situado a una distancia de 9.860 Å ($I = 100$);
- un plano (020) situado a una distancia de 4.533 Å ($I = 95$);
- un plano (003) situado a una distancia de 3.149 Å ($I = 81$);
- un plano (060) situado a una distancia de 1.520 Å ($I = 73$).

30 **[0147]** En comparación con el Ejemplo 5, utilizando el mismo material de partida (precipitación de un gel silicio/germano-metálico y secado del gel en un horno), incluso mediante el aumento de la temperatura del tratamiento hidrotérmico de 50°C se tarda 18 horas para obtener una composición de talco, en lugar de 6 horas a 300°C en presencia de acetato de sodio (1,3 M).

35 **[0148]** Las condiciones de tratamiento hidrotérmico descritas, respectivamente, en cada uno de los Ejemplos 1 a 11 permiten obtener composiciones de talco que comprenden partículas minerales filosilicatadas que tienen al menos una fase no hinchable. El análisis de difracción de composiciones de talco de rayos X diferentes preparadas en los Ejemplos 1 a 11 se utilizan para confirmar la presencia de una fase no hinchable formada por un apilamiento de capas elementales de tipo filosilicato 2/1 y la fórmula química $\text{Si}_4\text{M}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ mediante la identificación de los picos de difracción característicos de talco.

40 **[0149]** Además, es evidente a partir de todos los ejemplos anteriores, que solamente un tratamiento hidrotérmico en presencia de una sal de carboxilato de la fórmula R-COOM (M' designa un metal seleccionado del grupo que consiste en Na y K, y R se selecciona de H y grupos de alquilo que tienen menos de 10 átomos de carbono) proporciona una composición de talco que comprende partículas inorgánicas filosilicatadas que tienen al menos una fase no hinchable en menos 10 horas, como en las condiciones descritas en cada uno de los Ejemplos 1 a 11.

EJEMPLO 17 - Preparación de una composición que comprende partículas minerales sintéticas de acuerdo con la invención

50 **[0150]** En primer lugar, se prepara un precursor es de hidrogel preparado de partículas de silicato de zinc de la fórmula Zn_2SiO_4 . Para ello, se prepara en primer lugar una solución que comprende 10,6 g de metasilicato de sodio pentahidratado ($\text{Na}_2\text{OSiO}_2 \cdot 5 \text{H}_2\text{O}$) disueltos en 100 ml de agua destilada, y en segundo lugar, una solución de 21,95g que comprende acetato de zinc dihidratado $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ disuelto en 100 ml de agua destilada. Se añade, bajo agitación magnética, la solución de acetato de zinc a la solución de metasilicato de sodio. En el acto se forma un precipitado blanco.

55 **[0151]** La solución obtenida se agita durante 5 minutos y el precursor de hidrogel de partículas de silicato de zinc se recuperó por centrifugación (5 minutos a 4000 revoluciones/min) y dos ciclos consecutivos de lavado con agua destilada y centrifugación.

60 **[0152]** El hidrogel obtenido se añade a 100 ml de agua destilada y se secó por liofilización.

65 **[0153]** Esto es seguido por un tratamiento hidrotérmico del precursor de hidrogel de partículas de silicato de zinc preparado de modo precedente. Para ello, hemos preparado una solución acuosa de acetato de sodio trihidratado $\text{CH}_3\text{-COONa} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ a una concentración de 4 M. Se dispersa 2 g de metal de gel de sílice previamente secado por liofilización en 27 ml de esta solución de acetato de sodio. La colocación de la suspensión en un reactor en un titanio

cerrado. El reactor de titanio se colocó en un horno a la temperatura de 250°C durante 6 horas.

[0154] Después de enfriarse a temperatura ambiente, se abrió el reactor y la suspensión que comprende el polvo blanco se centrifuga. La solución de acetato de sodio sobrenadante se recupera y puede reciclarse.

5 **[0155]** La pulpa blanca separada de la solución de etilo se lava 3 veces con agua desionizada y después se secó en un horno calentado a una temperatura de 130°C durante 12 h. Después de secar 1,51 g de un sólido pulverulento blanco.

10 **[0156]** En la Figura 2 se muestra el difractograma de rayos X de la composición de silicato de zinc que tiene la fórmula Zn_2SiO_4 , obtenida de este modo.

15 **[0157]** El difractograma de rayos X de esta composición de silicato de zinc se muestra en la Figura 2 tiene los siguientes picos de difracción: 7,00 Å (I = 13); 4,03 Å (I = 26); 3,48 Å (I = 56); 2,84 Å (I = 100); 2,63 Å (I = 80); 2,31 Å (I = 45); 1,86 Å (I = 30); 1,55 Å (I = 13); 1,42 Å (I = 28); 1,36 Å (I = 13); 1,33 Å (I = 16).

[0158] La intensidad I de los picos de los datos correspondientes se normaliza al pico más intenso de difractograma, la intensidad del pico más fuerte considerándose como 100.

20 **[0159]** Los picos de difracción del silicato de zinc Zn_2SiO_4 como se define en la tarjeta JCPDS correspondiente (willemite) son los siguientes:

25 6,97 Å (I = 14); 4,09 Å (I = 16); 4,02 Å (I = 33); 3,48 Å (I = 72); 2,83 Å (I = 100); 2,63 Å (I = 86); 2,31 Å (I = 50); 1,86 Å (I = 40); 1,55 Å (I = 17); 1,42 Å (I = 34); 1,41 Å (I = 24); 1,36 Å (I = 18); 1,34 Å (I = 19).

EJEMPLO COMPARATIVO 18

30 **[0160]** Se reproduce el método descrito en el Ejemplo 17, pero en ausencia de acetato de sodio. Un tratamiento hidrotérmico llevado a cabo en agua (sin sal de carboxilato) del precursor de hidrogel de partículas de silicato de zinc (previamente secado en un horno) a una temperatura de 250°C durante 6 horas no es suficiente para obtener una composición de silicato de zinc, la fórmula Zn_2SiO_4 .

35 **[0161]** De hecho, el difractograma de rayos X de la composición obtenida después de dicho tratamiento hidrotérmico no tiene los picos de difracción correspondientes a los picos de difracción de un silicato de zinc.

40 **[0162]** Por lo tanto, es evidente a partir de los Ejemplos 17 y 18 que sólo un tratamiento hidrotérmico de un precursor de hidrogel de partículas minerales sintéticas, tales como partículas de silicato de zinc Zn_2SiO_4 en presencia de una sal de carboxilato de fórmula R-COOM' (M' que designa un metal seleccionado del grupo que consiste en Na y K, y R se selecciona de H y grupos alquilo que tienen menos de 10 átomos de carbono) proporciona una composición que comprende dichas partículas de silicato zinc después de una duración corta (6 horas) y a una temperatura de 250°C.

45 **[0163]** La invención puede ser muchas otras aplicaciones y diversas alternativas a las realizaciones y ejemplos descritos anteriormente. En particular, dicha composición puede comprender partículas minerales filosilicadas en las que los diferentes metales están situados en elevación octaédrica, como en $(Si_xGe_{1-x})_4 M_3O_{11}$, $n'H_2O$, M tiene la fórmula $(Co_{0,5}Ni_{0,5})$ o $(Mg_{0,34}Cu_{0,33}Fe_{0,33})$.

50

55

60

65

Reivindicaciones

1. Método para preparar una composición que comprende partículas minerales sintéticas de silicato, en el que:

- 5 - se prepara un precursor de hidrogel de dichas partículas minerales sintéticas de silicato,
 - se somete dicho hidrogel a un tratamiento hidrotérmico,

caracterizado porque:

- 10 - se realiza dicho tratamiento hidrotérmico a una temperatura entre 150°C es de 600°C,
 - se realiza dicho tratamiento hidrotérmico en presencia de al menos una sal de carboxilato en el medio de tratamiento, teniendo dicha sal de carboxilato para fórmula R-COOM' en la que:

- 15 o M' designa un metal seleccionado del grupo que consiste en Na y K, y
 o R es seleccionado entre H los grupos alquilo que comprenden menos de 10 átomos de carbono,

dicha al menos una sal de carboxilato de fórmula R-COOM' añadiéndose a dicho medio de tratamiento de tal manera que tiene, en relación con el silicio, una relación molar R-COOM'/Si de entre 0,1 y 25.

- 20 **2. Método según la reivindicación 1, caracterizado porqué** es selecciona R del grupo que consta de H, CH₃- y CH₃-CH₂-CH₂-.

- 3. Método según una de las Reivindicaciones 1 o 2 caracterizado porqué** dichas partículas minerales sintéticas son partículas minerales de filosilicato.

- 25 **4. Método según una de las Reivindicaciones 1 a 3, caracterizado porqué** dicho precursor de hidrogel de dichas partículas sintéticas minerales es un gel silico/germano-metálico de la fórmula (Si_xGe_{1-x})₄M₃O₁₁, n'H₂O:

- 30 - M que designa al menos un metal divalente que tiene por fórmula Mg_{y(1)}Co_{y(2)}Zn_{y(3)}Cu_{y(4)}Mn_{y(5)}Fe_{y(6)}Ni_{y(7)}Cr_{y(8)};

 cada y(i) que representa un número real del Intervalo [0; 1], y tal que
$$\sum_{i=1}^8 y(i) = 1, \quad y$$

- 35 - siendo X un número real del intervalo [0; 1],
 - n' se refiere a un número de molécula(s) de agua asociada con dicho gel silico/germano-metálico.

- 40 **5. Método según una de las reivindicaciones 1 a 4, caracterizada porqué** la(s) sal(es) de carboxilato de fórmula R-COOM' se añade(n) a dicho medio de tratamiento de tal manera que tienen, con respecto un dicho precursor de hidrogel de dichas partículas sintéticas minerales, una relación molar R-COOM'/ hidrogel entre 0,4 y 100.

- 45 **6. Método de acuerdo con una de las reivindicaciones 1 a 5, caracterizada porqué** la(s) sal(es) de carboxilato de fórmula R-COOM' se añade(n) a dicho medio de tratamiento al principio de dicho tratamiento hidrotérmico.

- 7. Método de acuerdo con una de las reivindicaciones 1 a 6, caracterizada porqué** la(s) sal(es) de carboxilato de fórmula R-COOM' se añade(n) a dicho medio de tratamiento de tal manera que se ajusta su pH a un valor entre 8 y 12.

- 50 **8. Método de acuerdo con una de las Reivindicaciones 1 a 7, caracterizada porqué** se añade la(s) sal(es) de carboxilato de fórmula R-COOM' a dicho medio de tratamiento de tal manera que la concentración de sal(es) de carboxilato de fórmula R-COOM' en el medio de tratamiento se comprenda entre 0,2 mol/L y 10 mol/L.

- 55 **9. Método según una de las Reivindicaciones 1 a 8, caracterizada porqué** dicho tratamiento hidrotérmico se lleva a cabo a una temperatura entre 200°C y 400°C.

10. Método según una de las Reivindicaciones 1 a 9, caracterizada porqué dicho tratamiento hidrotérmico es lleva a cabo bajo presión de vapor de saturación y bajo agitación.

- 60 **11. Método según una de las Reivindicaciones 1 a 10, caracterizada porqué** consecutivamente a dicho tratamiento hidrotérmico, se seca dichas partículas sintéticas minerales obtenidas por liofilización.

- 12. Método según una de las reivindicaciones 1 a 11, caracterizada porqué** consecutivamente a dicho tratamiento hidrotérmico, se lleva un cabo un tratamiento anhidro a una temperatura entre 300°C y 600°C.

- 65 **13. Método según una de las reivindicaciones 3 a 12, caracterizada porqué** dichas partículas minerales de

filosilicato tiene al menos una fase no hinchable formada desde una pila de láminas básicas del tipo de filosilicato 2/1 y de fórmula química $(\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x})_4\text{M}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$.

5 **14.** Metodología según una de las reivindicaciones 1 a 13, **caracterizada porque** dicha composición que comprende partículas de silicato de metilo, tiene, en difracción de rayos X, los picos de difracción característicos siguientes:

- 10 - un plano (001) situado a una distancia entre 9,50 Å 10,25 Å;
- un plano (020) situado a una distancia entre 4,50 Å 4,61 Å;
- un plano (003) situado a una distancia entre 3,10 Å 3,20 Å;
- un plano (060) situado a una distancia entre 1,50 Å 1,55 Å.

15

20

25

30

35

40

45

50

55

60

65

Figura 1

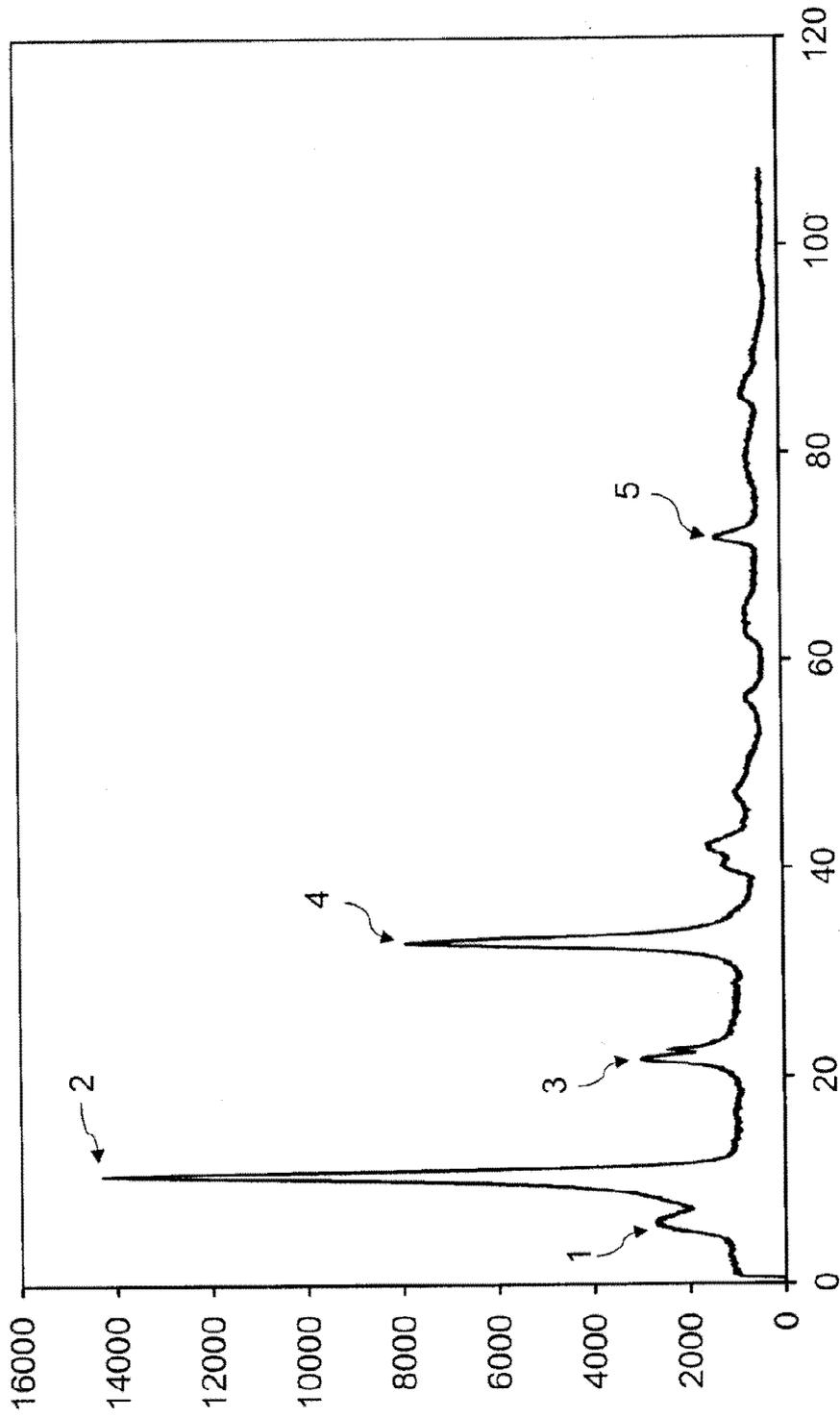


Figura 2

