



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ,
ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21), (22) Заявка: 2006125795/15, 18.07.2006

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
18.07.2006

(43) Дата публикации заявки: 27.01.2008

(45) Опубликовано: 10.06.2008 Бюл. № 16

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: **МОРОСАНОВА Е.И., РЕЗНИКОВА Е.А., ВЕЛИКОРОДНЫЙ А.А.** Индикаторные порошки на основе модифицированных ксерогелей для твердофазно-спектрофотометрического и тест-определения аскорбиновой кислоты и гидразинов. - Журнал аналитической химии, 2001, т.56, №2, с.195-200. RU 2139244 C1, 10.10.1999. RU 2139243 C1, 10.10.1999. RU 2256612 C1, 20.07.2005. US 5525643 A, 11.06.1996. WO 03102001 A1, 11.12.2003.

Адрес для переписки:

129090, Москва, а/я 11, Патентная фирма
ПРОПАТЕНТ, пат.пов. Н.А. Серпковой, рег. №
860

(72) Автор(ы):

Моросанова Елена Игоревна (RU)

(73) Патентообладатель(и):

**Общество с ограниченной ответственностью
"МедЭкоТест" (RU)**

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ ДИОКСИДА КРЕМНИЯ, МОДИФИЦИРОВАННОГО МОЛИБДОФОСФОРНЫМ ГЕТЕРОПОЛИСОЕДИНЕНИЕМ, И ИНДИКАТОРНАЯ ТРУБКА

(57) Реферат:

Изобретение может быть использовано в аналитической химии, пищевой промышленности. Способ получения диоксида кремния, модифицированного молибдофосфорным гетерополисоединением, включает гидролиз тетраэтоксисилана в среде этанола в присутствии гексафторсиликата аммония, молибдофосфорного гетерополисоединения и соединения переходного металла, способного к восстановлению, и последующую сушку созревшего геля микроволновым излучением мощностью 800-1000

Вт. Индикаторная трубка выполнена в виде прозрачной трубки из стекла или из полимерного материала, полость трубки заполнена измельченным до порошкообразного состояния модифицированным молибдофосфорным гетерополисоединением диоксидом кремния. Изобретение позволяет получить пористый модифицированный диоксид кремния для определения 0,2-50 мг/л гидразинов, 100-2000 мг/л аскорбиновой кислоты, 20-100 мг/л олова (II). 2 н. и 8 з.п. ф-лы, 1 табл.



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY,
PATENTS AND TRADEMARKS

(19) **RU** ⁽¹¹⁾ **2 326 049** ⁽¹³⁾ **C2**

(51) Int. Cl.

C01B 33/16 (2006.01)

G01N 31/22 (2006.01)

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21), (22) Application: **2006125795/15, 18.07.2006**

(24) Effective date for property rights: **18.07.2006**

(43) Application published: **27.01.2008**

(45) Date of publication: **10.06.2008 Bull. 16**

Mail address:

**129090, Moskva, a/ja 11, Patentnaja firma
PROPATENT, pat.pov. N.A. Serpkovoj, reg. № 860**

(72) Inventor(s):

Morosanova Elena Igorevna (RU)

(73) Proprietor(s):

**Obshchestvo s ogranichennoj otvetstvennost'ju
"MedEhkoTest" (RU)**

(54) **METHOD OF OBTAINING SILICON DIOXIDE, MODIFIED BY MOLYBDOPHOSPHORIC HETEROPOLYCOMPOUND, AND AN INDICATION TUBE**

(57) Abstract:

FIELD: analytical chemistry; food industry.

SUBSTANCE: method of obtaining silicon dioxide, modified by molybdophosphoric heteropolycompound, involves hydrolysis of tetraethoxysilane in a medium of ethanol in the presence of ammonium hexafluosilicate, molybdophosphoric heteropolycompound and a transition metal compound, which can be reduced, and with subsequent drying of the mature gel using microwave radiation with power from 800 to

1000 W. The indicator tube is made from a transparent tube made from glass or polymer material. The cavity of the tube is filled with powdered modified molybdophosphoric heteropolycompound silicon dioxide. The invention allows to obtain a porous modified silicon dioxide for determining 0.2-50 mg/l of diamides, 100-2000 mg/l ascorbic acid; 20-100 mg/l tin (II).

EFFECT: obtaining of porous modified silicon dioxide.

10 cl, 3 dwg, 1 tbl

RU 2 3 2 6 0 4 9 C 2

RU 2 3 2 6 0 4 9 C 2

Изобретение относится к области химии, пищевой промышленности и другим отраслям, где необходимо экспрессное определение ионов металлов, анионов и органических соединений, а конкретно к способам получения диоксида кремния, модифицированного молибдофосфорным гетерополисоединением, и к индикаторным трубкам.

5 Известен способ получения диоксида кремния, заключающийся во введении в смесь тетраэтоксисилана этанола и воды в присутствии гексафторсиликата аммония молибдофосфорного соединения и соединения меди(II). После созревания геля проводится сушка микроволновым излучением мощностью 600 Вт (Моросанова Е.И., Резникова Е.А., Великородный А.А., Журнал аналитической химии, 2001, Т.56, № 2, с.195-200).

10 Полученный известным способом пористый материал используется для определения 0,3-3 мг/л гидразинов и 10-400 мг/л аскорбиновой кислоты. Определение больших содержаний восстановителей невозможно из-за вымывания иммобилизованных гетерополисоединений. По этой же причине известный материал не позволяет определять соединения олова(II).

15 В известном решении при определении восстановителей материал используется в качестве индикаторного порошка. Определение производится как с использованием аналитических приборов (спектрофотометров), так и визуально-колориметрически с помощью шкал цветности.

20 Технический результат изобретения заключается в получении диоксида кремния, модифицированного аналитическим реагентом в виде молибдофосфорного гетерополисоединения, что позволяет расширить интервал определяемых концентраций гидразинов и аскорбиновой кислоты. Материал позволяет определять 0,2-50 мг/л гидразинов, 100-2000 мг/л аскорбиновой кислоты, а также 20-100 мг/л олова(II). Кроме того, изобретение решает задачу создания средства в виде индикаторной трубки, 25 обеспечивающей возможность проведения экспресс анализа в указанном диапазоне концентраций.

Технический результат изобретения достигается тем, что способ получения диоксида кремния, модифицированного аналитическим реагентом, включает гидролиз тетраэтоксисилана в среде этанола в присутствии гексафторсиликата аммония, 30 молибдофосфорного гетерополисоединения и соединения переходного металла, способного к восстановлению, а также последующую сушку созревшего геля микроволновым излучением мощностью 800-1000 Вт.

В качестве иона переходного металла, способного к восстановлению, могут быть использованы следующие ионы: железо(III), титан(IV) или медь(II). Восстановление 35 молибдофосфорных гетерополисоединений в присутствии указанных ионов является автокаталитическим. Активаторами реакции являются образующиеся в начальный момент восстановления промежуточные смешанные комплексы, в состав которых входят ионы переходных металлов. При последующем течение реакции ион переходного металла выходит из комплекса и конечным продуктом реакции является восстановленная форма 40 гетерополисоединений.

В качестве молибдофосфорного гетерополисоединения могут быть использованы молибдофосфорные гетерополисоединения 12 и 18 рядов, в том числе молибдофосфорные кислоты, их соли, смеси кислот и солей.

45 Согласно изобретению индикаторная трубка выполняется в виде прозрачной трубки из стекла или из полимерного материала, которая заполняется полученным описанным выше способом модифицированным диоксидом кремния.

Внутренний диаметр прозрачной трубки лежит в диапазоне 0,5-3 мм, а ее длина - в диапазоне 40-200 мм. В качестве инертного пористого материала для уплотнения концов трубки может быть использован целлюлозно-бумажный нетканый материал. При 50 использовании трубки из полимерного материала используется трубка из полиэтилена или полиакриламида.

Благодаря физико-химическим характеристикам порошка диоксида кремния (удельная поверхность и пористость), полученного способом согласно изобретению, обеспечивается

удерживание в объеме частиц порошка продуктов взаимодействия иммобилизованного гетерополисоединения. Это приводит к расширению диапазонов определяемых содержаний неорганических и органических восстановителей. Индикаторный порошок может быть использован для определения восстановителей в водных растворах в различных вариантах, в том числе и с помощью индикаторных трубок.

Обладая окислительно-восстановительными свойствами модифицированный молибдофосфорным гетерополисоединением диоксид кремния, имеющий пористую структуру, реагирует с различными восстановителями с образованием интенсивно окрашенных продуктов восстановления - «синей». На использовании этой достаточно широко известной реакции основан используемый метод определения различных органических и неорганических восстановителей, в том числе аскорбиновой кислоты, гидразинов, олова(II). Благодаря закрепленным (иммобилизованным) молибдофосфорным гетерополисоединениям обеспечивается возможность значительно упростить и ускорить процедуру анализа, сделать возможным проведение во внелабораторных условиях, что достигается, в частности, использованием аналитических трубок.

Возможность осуществления изобретения иллюстрируется следующими примерами получения индикаторного порошка диоксида кремния, модифицированного молибдофосфорным гетерополисоединением.

Пример 1

К 20 мл тетраэтоксисилана прибавляют 50 мл насыщенного раствора молибдофосфорной гетерополикислоты в этаноле, 15 мл 0,05 М водного раствора гексафторсиликата аммония и 5 мл 0,2 М водного раствора титана (IV).

Полученный раствор оставляют при комнатной температуре до полного созревания геля.

Через 2 ч созревший гель высушивают под действием микроволнового излучения мощностью 800 Вт до постоянной массы в течение 6 мин.

Высушенный образец измельчают и рассеивают на фракции. Желтая окраска полученного порошка обусловлена присутствием в нем молибдофосфорной гетерополикислоты.

При использовании материала в качестве индикаторного порошка диапазон определяемых содержаний гидразинов в варианте твердофазной спектрофотометрии составляет 0,2-10 мг/л, в варианте визуальной колориметрии - 0,2-50 мг/л.

Пример 2

К 20 мл тетраэтоксисилана прибавляют 50 мл этилового спирта, 10 мл водного раствора смеси молибдофосфорных гетерополикислот 12 и 18 рядов, 15 мл 0,1 М водного раствора гексафторсиликата аммония и 5 мл 0,2 М раствора меди(II).

Полученный раствор оставляют при комнатной температуре до полного созревания геля.

Через 1.5 ч созревший гель высушивают под воздействием микроволнового излучения мощностью 900 Вт до постоянной массы в течение 5 мин.

Высушенный образец измельчают и рассеивают на фракции. Полученный порошок имеет желтый цвет, обусловленный присутствием в нем молибдофосфорных гетерополикислот.

При использовании материала в качестве индикаторного порошка диапазон определяемых содержаний аскорбиновой кислоты в варианте твердофазной спектрофотометрии составляет 2-600 мг/л, в варианте визуальной колориметрии - 10-1000 мг/л, в варианте индикаторных трубок 100-2000 мг/л.

Пример 3

0.5 г молибдофосфата аммония тщательно измельчают и вносят в 50 мл этилового спирта. После этого к смеси быстро прибавляют 20 мл тетраэтоксисилана, 15 мл 0,1 М водного раствора гексафторсиликата аммония, 5 мл 0,2 М водного раствора железа(III).

Смесь перемешивают и оставляют при комнатной температуре до полного созревания геля.

Через 15 мин созревший гель высушивают под воздействием микроволнового излучения мощностью 1000 Вт до постоянной массы в течение 2 мин.

Высушенный образец измельчают и рассеивают на фракции. Полученный порошок имеет желтый цвет, обусловленный присутствием в нем молибдофосфата аммония.

5 При использовании материала в качестве индикаторного порошка диапазон определяемых содержаний олова(II) в варианте индикаторных трубок составляет 20-100 мг/л.

Результаты определения восстановителей представлены в Таблице.

10 В варианте твердофазно-спектрофотометрического определения к 0,3 г индикаторного порошка приливают 25 мл анализируемого раствора. Суспензию перемешивают в течение 15 мин, затем измеряют оптическую плотность порошка при 680 нм и определяют концентрацию восстановителя по заранее построенному градуировочному графику.

15 В варианте визуальной колориметрии к 0,2 г индикаторного порошка приливают 25 мл анализируемого раствора. Суспензию перемешивают в течение 15 мин, затем сравнивают окраску индикаторного порошка с шкалой цветности и определяют концентрацию восстановителя.

20 В варианте индикаторных трубок: индикаторную трубку опускают в анализируемый раствор на глубину 2-3 мм. После поднятия фронта жидкости до верхнего конца индикаторную трубку вынимают и измеряют длину окрашенной в сине-зеленый цвет зоны и определяют концентрацию восстановителя по заранее построенному градуировочному графику.

Таблица				
Определяемое вещество	Вариант определения	Диапазон определяемых содержаний, мг/л	Время анализа, мин	Объект анализа
25 Гидразины	Твердофазная спектрофотометрия	0,2-10	20	Технологические растворы, вытяжки из почв
	Визуальная колориметрия	0,2-50	20	
Аскорбиновая кислота	Твердофазная спектрофотометрия	2-600	7	Соки, фармацевтические препараты
	Визуальная колориметрия	10-1000	7	
	Индикаторная трубка	100-2000	5	
30 Олово(II)	Индикаторная трубка	5-100 мкг/флакон	5	Реагенты для получения радиофармпрепаратов

Индикаторная трубка изготавливается следующим образом.

35 Берется стеклянная прозрачная трубка с внутренним диаметром 1,5 мм и длиной 60 мм. Вначале один конец трубки уплотняется целлюлозно-бумажным нетканым материалом, потом со стороны второго конца в трубку засыпается измельченный порошок модифицированного диоксида кремния. При засыпке порошка осуществляется его уплотнение встряхиванием трубки и постукиванием по ней. Второй конец трубки также уплотняется целлюлозно-бумажным нетканым материалом. После того, как оба конца трубки уплотнены, пересыпание порошка внутри нее не допускается.

40

Формула изобретения

1. Способ получения диоксида кремния, модифицированного молибдофосфорным гетерополисоединением, включающий гидролиз тетраэтоксисилана в среде этанола в присутствии гексафторсиликата аммония, молибдофосфорного гетерополисоединения и соединения переходного металла, способного к восстановлению, а также последующую сушку созревшего геля микроволновым излучением мощностью 800-1000 Вт.

2. Способ по п.1, отличающийся тем, что в качестве соединения переходного металла, способного к восстановлению, используется соединение железа (III), титана (IV) или меди (II).

50 3. Способ по п.1, отличающийся тем, что в качестве молибдофосфорного гетерополисоединения могут быть использованы молибдофосфорные гетерополисоединения 12 и 18 рядов.

4. Способ по п.1, отличающийся тем, что в качестве молибдофосфорного

гетерополисоединения могут быть использованы молибдофосфорные кислоты, их соли, смеси кислот и солей.

5 5. Индикаторная трубка, выполненная в виде прозрачной трубки из стекла или из полимерного материала, полость трубки заполнена измельченным до порошкообразного состояния модифицированным молибдофосфорным гетерополисоединением диоксидом кремния, полученным гидролизом тетраэтоксисилана в среде этанола в присутствии гексафторсиликата аммония, молибдофосфорного гетерополисоединения и соединения переходного металла, способного к восстановлению, с последующей сушкой созревшего геля микроволновым излучением мощностью 800-1000 Вт, при этом концы трубки 10 уплотнены инертным пористым материалом.

6. Трубка по п.5, отличающаяся тем, что в качестве соединения переходного металла, способного к восстановлению, используется соединение железа (III), титана (IV) или меди (II).

7. Трубка по п.5, отличающаяся тем, что в качестве молибдофосфорного гетерополисоединения могут быть использованы молибдофосфорные гетерополисоединения 12 и 18 рядов. 15

8. Трубка по п.5, отличающаяся тем, что внутренний диаметр прозрачной трубки лежит в диапазоне 0,5-3 мм, а ее длина - в диапазоне 40-200 мм.

9. Трубка по п.5, отличающаяся тем, что в качестве инертного пористого материала использован целлюлозно-бумажный нетканый материал. 20

10. Трубка по п.5, отличающаяся тем, что при использовании прозрачной трубки из полимерного материала используется трубка из полиэтилена или из полиакриламида.

25

30

35

40

45

50