

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 650 083**

21 Número de solicitud: 201630820

51 Int. Cl.:

C01B 39/48 (2006.01)

B01J 29/04 (2006.01)

12

SOLICITUD DE PATENTE

A1

22 Fecha de presentación:

16.06.2016

43 Fecha de publicación de la solicitud:

16.01.2018

56 Se remite a la solicitud internacional:

PCT/ES2017/070439

71 Solicitantes:

**CONSEJO SUPERIOR DE INVESTIGACIONES
CIENTÍFICAS (CSIC) (50.0%)
C/ Serrano, 117
28006 Madrid ES y
UNIVERSITAT POLITÈCNICA DE VALÈNCIA
(50.0%)**

72 Inventor/es:

**CORMA CANÓS, Avelino;
REY GARCÍA, Fernando;
VALENCIA VALENCIA, Susana;
CANTÍN SANZ, Ángel;
JORDÁ MORET, José Luis;
BERECIARTUA PÉREZ, Pablo Javier;
SIMANCAS COLOMA, Raquel y
BIESEKI, Lindiane**

74 Agente/Representante:

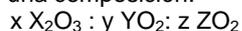
PONS ARIÑO, Ángel

54 Título: **MATERIAL ITQ-62, SU PROCEDIMIENTO DE OBTENCIÓN Y SU USO**

57 Resumen:

Material ITQ-62, su procedimiento de obtención y su uso.

En la presente invención, se presenta un material cristalino microporoso, su procedimiento de obtención y uso, que tiene una composición:



en la que X es un elemento trivalente tal como Al, B, Fe, In, Ga, Cr, o mezclas de estos, donde (y+z)/x puede tomar valores entre 9 e infinito; Y corresponde a un elemento tetravalente tal como Ti, Sn, Zr, V o mezclas de ellos, donde z/y puede tomar valores entre 10 e infinito; Z corresponde a un elemento tetravalente seleccionado entre Si y Ge o mezclas de ellos.

ES 2 650 083 A1

MATERIAL ITQ-62, SU PROCEDIMIENTO DE OBTENCIÓN Y SU USO

DESCRIPCIÓN

5 **Campo de la Técnica**

La presente invención pertenece al campo técnico de los materiales cristalinos microporosos de naturaleza zeolítica, útiles como adsorbentes, catalizadores o componentes de catalizadores, para diferentes procesos.

10

Antecedentes

Las zeolitas son aluminosilicatos cristalinos porosos que han encontrado importantes aplicaciones como catalizadores, adsorbentes e intercambiadores iónicos. Estos materiales zeolíticos tienen estructuras bien definidas que forman canales y cavidades en su interior de tamaño y forma uniforme que permiten la adsorción de determinadas moléculas, mientras que impiden el paso al interior del cristal de otras moléculas de tamaño demasiado grande para difundir a través de los poros. Esta característica confiere a estos materiales propiedades de tamiz molecular. Estos tamices moleculares pueden incluir en la red, además de Si, otros elementos del grupo IIIA del sistema periódico, todos ellos tetraédricamente coordinados. La carga negativa generada por los elementos del grupo IIIA tetraédricamente coordinados en posiciones de red está compensada por la presencia en el cristal de cationes, como por ejemplo cationes alcalinos o alcalinotérreos. Estos cationes pueden ser intercambiados total o parcialmente por otro tipo de cationes mediante técnicas de intercambio iónico, pudiendo variar así las propiedades de un silicato dado seleccionando los cationes deseados.

Muchas zeolitas han sido sintetizadas en presencia de una molécula orgánica que actúa como agente director de estructura. Las moléculas orgánicas que actúan como agentes directores de estructura (ADE) contienen generalmente nitrógeno en su composición, y pueden dar lugar a cationes orgánicos estables en el medio de reacción.

Desde un punto de vista de sus posibles aplicaciones, las zeolitas que contienen sistemas de canales con distintas aperturas de poro son especialmente deseables ya que aportan selectividades en los procesos catalíticos que no pueden obtenerse con materiales con

35

canales con aperturas idénticas en todos ellos. Es por ello, que se ha desarrollado una importante actividad científica en este sentido.

Descripción de la invención

5

La presente invención se refiere, por un lado, a un material cristalino microporoso, que puede poseer la siguiente composición química en su forma calcinada:



donde:

10 X es un elemento trivalente seleccionado entre Al, B, Fe, In, Ga, Cr, y combinaciones de los mismos, preferentemente Al, B y combinaciones de los mismos;

Y es un elemento tetravalente seleccionado entre Ti, Sn, Zr, V y combinaciones de los mismos preferentemente Ti, Sn y combinaciones de los mismos;

Z es un elemento tetravalente seleccionado entre Si, Ge y combinaciones de los mismos, 15 preferentemente Si;

el valor de $(y+z)/x$ está comprendido entre 9 e infinito, preferentemente entre 20 e infinito;

el valor de z/y está comprendido entre 10 e infinito, preferentemente entre 15 e infinito;

y porque los elementos X, Y y Z se localizan en posiciones cristalinas como las descritas en la tabla 1. Además, dicho material puede presentar un diagrama de difracción como el

20 descrito en la tabla 3.

De los valores dados se deduce que el material cristalino ITQ-62 se puede obtener en ausencia de elementos trivalentes añadidos.

25 Según una realización preferida, el material cristalino microporoso descrito en la presente invención, se ha denominado ITQ-62. La estructura de este material presenta una red microporosa constituida por dos sistemas de canales con aperturas formadas por 8 y 12 tetraedros TO_4 en la misma dirección, que se cruzan con otros dos sistemas de canales en el plano perpendicular, siendo el material accesible a moléculas de interés en catálisis, en 30 diferentes procesos, como por ejemplo en procesos de adsorción o de separación. Además, presenta unidades estructurales de menor tamaño con forma de cubo, que no son accesibles dado que solo poseen ventanas formadas por cuatro tetraedros.

La estructura de la zeolita ITQ-62 puede describirse por su celda unidad, que es la unidad 35 estructural más pequeña que contiene todos los elementos estructurales de este material y cuyas proyecciones a lo largo de los ejes cristalográficos se muestran en las figuras 1 a 3.

La tabla 1 muestra la lista de posiciones atómicas de todos los átomos en coordinación tetraédrica en una celda unidad. Todos estos átomos están conectados entre sí a través de oxígenos puente que unen átomos tetraédricos contiguos dos a dos. En total, cada celda unidad contiene 48 átomos en coordinación tetraédrica, denominados T1, T2, T3, T4 hasta T48, distintos de oxígeno.

Según una realización preferida, el material descrito posee átomos en coordinación tetraédrica unidos a través de átomos de oxígeno puente que conectan átomos en coordinación tetraédrica contiguos, conteniendo 48 átomos en coordinación tetraédrica en su celda unidad, denominados T1, T2, T3, T4 hasta T48, que están localizados en las posiciones cristalográficas con coordenadas atómicas cartesianas x , y y z que se muestran en la Tabla 1.

Tabla 1

Coordenadas atómicas	x (Å)	y (Å)	z (Å)
T1	2.6	7.1	1.5
T2	13.1	15.7	1.5
T3	18.6	10.2	1.5
T4	8.0	1.5	1.5
T5	18.6	7.1	1.5
T6	8.0	15.7	1.5
T7	2.6	10.2	1.5
T8	13.1	1.5	1.5
T9	4.9	1.5	1.5
T10	15.5	10.2	1.5
T11	16.2	15.7	1.5
T12	5.6	7.1	1.5
T13	16.2	1.5	1.5
T14	5.6	10.2	1.5
T15	4.9	15.7	1.5
T16	15.5	7.1	1.5
T17	1.5	5.3	3.8
T18	12.1	13.9	3.8
T19	19.6	12.0	3.8

ES 2 650 083 A1

T20	9.0	3.4	3.8
T21	1.5	12.0	3.8
T22	12.1	3.4	3.8
T23	19.6	5.3	3.8
T24	9.0	13.9	3.8
T25	4.0	3.4	3.8
T26	14.6	12.1	3.8
T27	17.1	13.8	3.8
T28	6.6	5.2	3.8
T29	4.0	13.8	3.8
T30	14.6	5.2	3.8
T31	17.1	3.4	3.8
T32	6.6	12.1	3.8
T33	2.6	10.2	6.0
T34	13.1	1.5	6.0
T35	18.6	7.1	6.0
T36	8.0	15.7	6.0
T37	18.6	10.2	6.0
T38	8.0	1.5	6.0
T39	2.6	7.1	6.0
T40	13.1	15.7	6.0
T41	4.9	15.7	6.0
T42	15.5	7.1	6.0
T43	16.2	1.5	6.0
T44	5.6	10.2	6.0
T45	16.2	15.7	6.0
T46	5.6	7.1	6.0
T47	4.9	1.5	6.0
T48	15.5	10.2	6.0

Cada uno de los átomos T de la Tabla 1 se encuentra rodeado por cuatro átomos de oxígeno como primeros vecinos y otros cuatro átomos T como segundos vecinos, de tal forma que los átomos T quedan conectados dos a dos a través de oxígenos puente formando enlaces T-O-T. La presencia de cationes o la diferente naturaleza de los átomos T

5

pueden modificar los valores presentados en la Tabla 1, por lo que cada coordenada cristalográfica puede modificarse hasta 1 Å del valor dado en la Tabla 1.

La zeolita ITQ-62 tiene en su forma sin calcinar un diagrama de difracción de rayos X cuyos picos de difracción más importantes vienen dados en la tabla 2, y en la tabla 3 para su forma calcinada.

Tabla 2

$2\theta^a$	Intensidad Relativa
6.5	mf
8.3	mf
10.1	d
11.5	md
13.1	d
13.5	md
14.3	md
15.4	f
15.7	md
17.5	md
17.8	md
19.6	md
20.2	d
21.6	m
22.0	md
22.9	md
23.4	d
24.3	md
24.8	md
25.2	md
25.5	m
26.0	md

^a (± 0.5)

Tabla 3

$2\theta^a$	Intensidad Relativa
6.6	mf
8.4	f
10.2	md
11.7	md
13.2	md
14.4	md
15.5	d
15.9	md
17.9	md
19.9	md
20.6	md
21.6	d
22.2	md
23.1	md
23.4	md
23.7	md
24.4	md
24.9	md
25.2	md
25.6	md
26.1	md

^a (± 0.5)

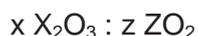
Estos difractogramas de rayos X se obtuvieron con un difractómetro Panalytical X'Pert Pro
5 equipado con una rendija de divergencia fija utilizando la radiación $K\alpha$ del cobre. La
intensidad relativa de las líneas se calcula como el porcentaje respecto del pico más intenso,
y se considera muy fuerte (mf)= 80-100, fuerte (f)=60-80, media (m)= 40-60, débil (d)=20-40,
y muy débil (md)= 0-20. Debe tenerse en cuenta que los datos de difracción listados para
10 estas muestras como líneas sencillas o únicas, pueden estar formados por múltiples
solapamientos o superposición de reflexiones que, en ciertas condiciones, tales como
diferencias en la composición química, pueden aparecer como líneas resueltas o
parcialmente resueltas. Generalmente, los cambios en la composición química pueden

originar variaciones en los parámetros de la celda unidad y/o cambios en la simetría del cristal, sin que se produzca un cambio en la estructura. Estas modificaciones, que incluyen también cambios en intensidades relativas pueden deberse también a diferencias en el tipo y cantidad de cationes de compensación, composición de red, tamaño de cristal y forma de los mismos, orientación preferente o al tipo de tratamientos térmicos o hidrotérmicos sufridos.

Según una realización particular de la presente invención, el valor de x puede ser igual a cero por lo que puede poseer una composición química:



Según otra realización particular, el valor de y es igual a cero por lo que puede poseer una composición química:



donde el valor de z/x puede estar comprendido entre 9 e infinito, y más preferentemente entre 20 e infinito.

Según otra realización preferente, el material de la presente invención, ITQ-62, puede poseer una composición química en su forma sin calcinar:



donde:

- R es un agente director de estructura, preferentemente dicho R contiene nitrógeno, y más preferentemente R está seleccionado entre una sal de un catión alquilamonio, un policatión alquilamonio y combinaciones de los mismos.
- 25 - X es un elemento trivalente seleccionado entre Al, B, Fe, In, Ga, Cr y combinaciones de los mismos, preferentemente Al, B y combinaciones de los mismos;
- Y es un elemento tetravalente seleccionado entre Ti, Sn, Zr, V y combinaciones de los mismos, preferentemente entre Ti, Sn, y combinaciones de los mismos;
- Z es un elemento tetravalente seleccionado entre Si, Ge y combinaciones de los mismos,
- 30 preferentemente Si;
- el valor de valor de $n/(x+y+z)$ está comprendido entre 1 y 0,001;

Según una realización preferente, el agente director de estructura definido como R es un policatión alquilamonio y más preferentemente está seleccionado entre hidróxido de $\text{N}^2, \text{N}^2, \text{N}^2, \text{N}^5, \text{N}^5, \text{N}^5, 3a, 6a$ -octametiloctahidropentaleno-2,5-diamonio, cualquiera de sus sales y combinaciones de los mismos.

De los valores dados según esta realización particular, se deduce claramente que el material cristalino ITQ-62 se puede sintetizar en ausencia de elementos trivalentes añadidos. Además, la relación n/z puede estar comprendida entre 1 y 0.001 en el material ITQ-62 según se sintetiza. El difractograma de rayos X de la zeolita en su forma sintetizada según esta realización particular presenta los picos de difracción que se listan en la Tabla 2.

Según una realización particular, x puede ser 0 y el material ITQ-62 puede poseer una composición química:



10 donde:

el valor de $n/(y+z)$ puede estar comprendido entre 1 y 0,001.

Según otra realización particular, y puede ser 0 y el material ITQ-62 puede poseer una composición química



15 donde:

el valor de z/x está comprendido entre 9 e infinito, preferentemente entre 20 e infinito, y el valor de $n/(x+z)$ está comprendido entre 1 y 0,001.

La presente invención también se refiere al procedimiento de obtención del material cristalino microporoso, ITQ-62, descrito anteriormente.

20

Según la presente invención, el procedimiento de preparación del material ITQ-62 puede comprender al menos los siguientes pasos:

a) preparación de una mezcla que comprende, al menos, H_2O , una fuente de iones fluoruro, un óxido u otra fuente del material tetravalente Z, un agente director de estructura (R), una fuente del elemento trivalente X, un óxido u otra fuente del material tetravalente Y, donde la mezcla de síntesis tiene una composición molar de óxidos en los siguientes rangos:

$(YO_2+ZO_2)/X_2O_3$ mayor de 2, preferentemente mayor de 5.

$H_2O/(YO_2+ZO_2)$ comprendida entre 1-50, preferentemente 2-30.

30 $R/(YO_2+ ZO_2)$ comprendida entre 0.05-3.0, preferentemente entre 0.05-1.

$F^-/(YO_2+ZO_2)$ comprendida entre 0.01-3.0, preferentemente entre 0.05-1.

ZO_2/YO_2 mayor de 5, preferentemente entre 8-25.

SiO_2/GeO_2 mayor de 1, preferentemente mayor de 5.

b) mantener la mezcla a una temperatura seleccionada entre 80 y 200°C hasta que se formen los cristales del material

c) recuperación del material cristalino.

Según una realización preferente, Z puede estar seleccionado entre Si, Ge y combinaciones de los mismos, preferentemente Si; X puede estar seleccionado entre Al, B, Fe, In, Ga, Cr y combinaciones de los mismos, preferentemente Al, B y combinaciones de los mismos e Y puede estar seleccionado entre Ti, Sn, Zr, V y combinaciones de los mismos, preferentemente entre Ti, Sn y combinaciones de los mismos.

Según otra realización preferente, el agente director de estructura R puede ser un compuesto que contiene N, preferentemente puede estar seleccionado entre una sal de un catión alquilamonio, un policatión alquilamonio o combinaciones de los mismos. Y más preferentemente puede ser un policatión alquilamonio, concretamente R puede estar está seleccionado entre hidróxido de $N^2, N^2, N^2, N^5, N^5, N^5, 3a, 6a$ -octametiloctahidropentaleno-2,5-diamonio, cualquiera de sus sales y combinaciones de los mismos.

La cristalización del material se puede llevar a cabo en agitación, en autoclaves a temperatura comprendida entre 80 y 200°C, a tiempos suficientes para conseguir la cristalización, por ejemplo entre 12 horas y 90 días. Al finalizar la etapa de cristalización, se separan los cristales del material de las aguas madres, y se recuperan tal y como se ha indicado anteriormente.

Debe tenerse en cuenta que los componentes de la mezcla de síntesis pueden provenir de distintas fuentes, y dependiendo de estos pueden variar tiempos y condiciones de cristalización. Con el fin de facilitar la síntesis, se pueden añadir cristales del mismo material o de este material calcinado como semillas, en cantidades de hasta 15% en peso respecto del total de óxidos, a la mezcla de síntesis. Estas pueden ser adicionadas previamente o durante la cristalización.

Según una realización particular, este material se podría preparar a partir de una mezcla de reacción que contiene H_2O , una fuente de aniones fluoruro, opcionalmente un óxido o una fuente del elemento trivalente X, como por ejemplo Al y/o B, un óxido o una fuente del elemento o elementos tetravalentes Z, como por ejemplo Si, una fuente de Ge, como por ejemplo GeO_2 y un agente orgánico director de estructura (R) generalmente un catión orgánico, que puede contener átomos distintos de C, H y N en su composición. Pueden utilizarse como agentes directores de estructura compuestos del tipo alquilamonio, y más preferentemente es el hidróxido de $N^2, N^2, N^2, N^5, N^5, N^5, 3a, 6a$ -octametiloctahidropentaleno-2,5-diamonio, cualquiera de sus sales o mezclas de ellas.

La composición de la mezcla de reacción tiene la siguiente composición en términos de relaciones molares de óxidos:

	Reactivos	Rango útil	Rango preferido
5	$(YO_2+ZO_2)/X_2O_3$	mayor de 2	mayor de 5
	$H_2O/(YO_2+ZO_2)$	1-50	2-30
	$R/(YO_2 + ZO_2)$	0.05-3.0	0.05-1.0
	$F/(YO_2+ ZO_2)$	0.01-3.0	0.05-1.0
	ZO_2/YO_2	mayor de 5	8-25
10	SiO_2/GeO_2	mayor de 1	mayor de 5

Según una realización particular, el procedimiento de preparación del material ITQ-62 puede comprender, además, una etapa de calcinación del material cristalino obtenido, calcinación que se puede llevar a cabo a vacío, en aire, nitrógeno, hidrógeno, argón, helio o cualquier otro gas y combinaciones de los mismos y a una temperatura entre 200°C y 1200°C, preferentemente entre 200 y 1000°C durante un tiempo que puede ser entre 2 minutos y 25 horas. El material ITQ-62 tras la calcinación posee un sistema de poros libre de materia orgánica, cuyo difractograma de rayos X presenta los picos que se listan en la Tabla 3. Durante esta calcinación pueden quedar en el interior de los canales o sobre la superficie del material residuos orgánicos provenientes del agente director de estructura. Estos residuos pueden ser eliminados mediante un tratamiento posterior de lavado con agua, cualquier alcohol con menos de seis carbonos o mezclas de ellos, así como por disoluciones acuosas o alcohólicas de sales inorgánicas.

Según una realización particular, dicho proceso o procesos de lavado puede comprender al menos la siguiente etapa: a) suspensión del material en una disolución de un compuesto seleccionado entre un ácido, una base, una sal amónica, una sal sódica, de cualquier metal alcalino, cualquier metal alcalino-terreo o mezclas de ellos. De manera preferente dicha disolución es una disolución acuosa, alcohólica, orgánica o mezcla de ambas.

El proceso de lavado se lleva a cabo a una temperatura preferentemente comprendida entre 0°C y 200°C. El diagrama de difracción del material resultante presenta los picos de difracción característicos del material ITQ-62.

Además, el material ITQ-62 calcinado o el material ITQ-62 calcinado y lavado pueden ser sometidos a uno o varios procesos post-síntesis.

Dichos tratamientos pueden consistir de manera preferente en tratar la ITQ-62 con disoluciones acuosas, alcohólicas, orgánicas o mezclas de ellas que contengan elementos trivalentes X, seleccionados preferentemente entre Al, Ga, B, Cr, Fe, In, y mezclas de ellos con el fin de incorporarlos a la red zeolítica. Este tratamiento post-síntesis se puede realizar a pHs alcalinos, ácidos o neutros a temperaturas comprendidas preferentemente entre 0 y 200°C durante un tiempo preferido entre 1 hora a 15 días. El material resultante presenta los picos de difracción característicos de este material ITQ-62.

Posteriormente se puede recuperar del sólido lavado mediante filtración, centrifugación o cualquier técnica de separación de sólidos de líquidos y puede ser posteriormente activado mediante calcinación a temperaturas superiores a 200°C.

Según una realización preferida, el tratamiento post-síntesis puede comprender al menos:

a) suspender el material en una disolución seleccionada preferentemente entre una disolución acuosa, alcohólica, orgánica y combinaciones de las mismas, que contiene al menos un elemento trivalente X seleccionado entre Al, Ga, B, Cr, Fe, In o mezclas de ellos;

b) recuperación del sólido mediante filtración, centrifugación o cualquier técnica de separación de sólidos de líquidos;

c) activación del material mediante calcinación a temperaturas superiores a 200°C.

Según una realización preferente dichos tratamientos son tratamiento de incorporación de metales trivalentes de manera que pueden aumentar la concentración de algún elemento trivalente en la composición. Por otro lado, la concentración y naturaleza del elemento trivalente se puede modificar con procesos post-síntesis.

Según una realización particular, el material cristalino con metales trivalentes incorporados mediante tratamientos post-síntesis tiene una composición molar en su estado anhidro que viene dado por la ecuación:



en la que X es un elemento trivalente tal como Al, B, Fe, In, Ga, Cr o mezclas de estos, Y es un elemento tetravalente tal como Ti, Sn, Zr, V o mezclas de ellos, y Z corresponde a un elemento seleccionado entre Si o Ge, o mezclas de ellos. El valor de (y+z)/x es al menos 9, y puede estar comprendido entre 20 e infinito y el valor z/y es de al menos 10. De los

valores dados se deduce claramente que el material cristalino ITQ-62 se puede sintetizar en ausencia de elementos trivalentes añadidos. El difractograma de rayos X de la zeolita tras el tratamiento post-síntesis para incorporar elementos trivalentes en su estructura presenta los picos de difracción característicos del material ITQ-62. El componente orgánico presente en el material ITQ-62 según se sintetiza se puede eliminar, por ejemplo por extracción y/o por tratamiento térmico calentando a temperatura por encima de 200° C durante un período de tiempo que puede estar comprendido entre 2 minutos y 25 horas.

Los cationes de compensación en el material en su forma sin calcinar, o después de un tratamiento térmico, pueden intercambiarse, en el caso de estar presentes, por otros cationes tales como iones metálicos, H⁺ y precursores de H⁺ como por ejemplo NH₄⁺. Entre los cationes que pueden introducirse por intercambio iónico se prefieren aquellos que pueden tener un papel positivo en la actividad del material como catalizador, y más específicamente se prefieren cationes tales como H⁺, cationes de tierras raras, y metales del grupo VIII, así como del grupo IIA, IIIA, IVA, Va, IB, IIB, IIIB, IVB, VB, VIIB de la tabla periódica de los elementos.

Asimismo, es posible introducir cationes en la red de la zeolita ITQ-62 mediante tratamientos post-síntesis. Estos tratamientos consisten en suspender la muestra de ITQ-62 calcinada o calcinada y lavada en una disolución acuosa, alcohólica, orgánica o mezclas de ambos que contiene el elemento trivalente que se desea incorporar a temperatura entre 0 y 200°C durante periodos comprendidos entre 1 hora y 15 días.

Con el fin de preparar catalizadores, el material cristalino de la presente invención puede combinarse íntimamente con componentes hidrogenantes-deshidrogenantes como platino, paladio, níquel, renio, cobalto, tungsteno, molibdeno, vanadio, cromo, manganeso, hierro y combinaciones de los mismos. La introducción de estos elementos se puede llevar a cabo en la etapa de cristalización, por intercambio (si ha lugar), y/o por impregnación o por mezcla física. Estos elementos pueden ser introducidos en su forma catiónica y/o a partir de sales u otros compuestos que por descomposición generen el componente metálico u óxido en su forma catalítica adecuada.

La presente invención también se refiere al uso del material descrito anteriormente según la presente invención y obtenido según el procedimiento de la presente invención descrito anteriormente en diferentes procesos, preferentemente como catalizador y como adsorbente. Existen diferentes procesos donde se puede utilizar el material de la presente

invención como catalizador, por ejemplo en procesos de conversión de hidrocarburos, procesos de desparafinado de hidrocarburos, procesos de conversión de alcoholes, procesos de conversión de alcoholes con menos de cuatro carbonos en olefinas, procesos de eliminación de contaminantes nitrogenados en corrientes gaseosas o líquidas, procesos de eliminación de óxidos de nitrógeno de corrientes gaseosas, procesos de eliminación de óxidos de nitrógeno de corrientes gaseosas en presencia de gases reductores donde el gas reductor puede estar seleccionado entre amoníaco, un hidrocarburo y combinaciones de los mismos.

10 A lo largo de la descripción y las reivindicaciones la palabra "comprende" y sus variantes no 25 pretenden excluir otras características técnicas, aditivos, componentes o pasos. Para los expertos en la materia, otros objetos, ventajas y características de la invención se desprenderán en parte de la descripción y en parte de la práctica de la invención.

15 **Breve descripción de las figuras**

Figura 1: Vista de la estructura de la zeolita ITQ-62 a lo largo del eje a (oxígenos omitidos para mayor claridad).

20 **Figura 2:** Vista de la estructura de la zeolita ITQ-62 a lo largo del eje b (oxígenos omitidos para mayor claridad).

Figura 3: Vista de la estructura de la zeolita ITQ-62 a lo largo del eje c (oxígenos omitidos para mayor claridad).

25 **Figura 4:** Afinamiento de Rietveld del diagrama de difracción de rayos X de una muestra de ITQ-62 calcinada a 923K, medido usando la radiación K alfa del cobre. Los puntos muestran el diagrama experimental. La línea a lo largo de los mismos muestra el diagrama calculado para la estructura propuesta. La diferencia entre ambos se muestra debajo. Las líneas 30 verticales bajo los diagramas señalan las posiciones de las reflexiones de Bragg.

Figura 5: Diagrama de difracción de rayos X de un ejemplo de muestra de material ITQ-62 sin calcinar.

35 **Figura 6:** Diagrama de difracción de rayos X de un ejemplo de muestra de material ITQ-62 calcinado.

Figura 7: Representación esquemática de la síntesis del catión $N^2,N^2,N^2,N^5,N^5,N^5,3a,6a$ -octametiloctahidropentaleno-2,5-diamonio.

La presente invención se ilustra mediante los siguientes ejemplos que no pretenden ser limitantes de la misma.

EJEMPLOS

Ejemplo 1. Preparación del agente director de estructura hidróxido de $N^2,N^2,N^2,N^5,N^5,N^5,3a,6a$ -octametiloctahidropentaleno-2,5-diamonio.

Sobre una disolución recién preparada y fuertemente agitada de 5.6 g $NaHCO_3$ en 360.0 mL de H_2O (pH=8) se adicionan 48.2 mL (526.3 mmol) de 1,3-acetonadicarboxilato de dimetilo seguidos de 23.0 mL (263.2 mmol) de 2,3-butanodiona. La mezcla permanece con agitación continua durante 72 h. Transcurrido este periodo el abundante precipitado obtenido se filtra a vacío y se enfría en un baño de hielo, acidificándose hasta pH=5 con HCl (5%). El crudo resultante se extrae tres veces con $CHCl_3$, lavando el conjunto de fases orgánicas con salmuera y secándolas sobre $MgSO_4$. La mezcla se filtra a través de filtro de pliegues y el filtrado obtenido se concentra a vacío utilizándose en la siguiente etapa sin mayor purificación.

El sólido resultante se suspende en una mezcla de 300.0 mL HCl (1M) y 30.0 mL de ácido acético glacial y a continuación se calienta a reflujo durante 24 h (pasando de un color verde pardo inicial a naranja). La mezcla resultante se enfría primero a temperatura ambiente y luego en un baño de hielo, extrayéndose a continuación cinco veces con CH_2Cl_2 ; secando el conjunto de fases orgánicas sobre $MgSO_4$. El crudo obtenido se filtra a través de filtro de pliegues y se concentra a vacío obteniendo 32.7 g (75%) de la dicetona deseada.

Esta dicetona es transformada en la correspondiente diamina, mediante una reacción de aminación reductiva que se describe a continuación.

350.0 mL de una disolución 2.0 M de dimetilamina en MeOH se diluyen con 200.0 mL de MeOH. La disolución se enfría en un baño de hielo y sobre ella se gotea una disolución de HCl 5 N en MeOH hasta conseguir pH=7-8. Entonces se adicionan 16.7 g (100.7 mmol) de la dicetona anteriormente preparada disueltos en la mínima cantidad posible de MeOH, seguidos de 10.2 g (161.2 mmol) de $NaBH_3CN$. La temperatura se deja subir a temperatura ambiente y se deja con agitación continua durante 72 h.

El posible exceso de NaBH_3CN se neutraliza adicionando HCl 5 N en MeOH hasta alcanzar $\text{pH}=2$, desplazando el HCN formado con una corriente de N_2 hasta una disolución saturada en KOH . La mezcla se concentra parcialmente a vacío y el crudo resultante se basifica con una disolución de KOH (25%) hasta alcanzar $\text{pH}=12$ y se satura con NaCl . El crudo obtenido se extrae tres veces con CH_2Cl_2 , secando el conjunto de fases orgánicas sobre MgSO_4 . Se concentra a vacío obteniendo 21.4 g (95%) de la diamina deseada.

En un tercer paso, la diamina se transforma en el correspondiente diamonio mediante una reacción de cuaternización de aminas terciarias con ioduro de metilo, tal y como se describe a continuación.

21.6 de la diamina anteriormente deseada se disuelven en 100.0 mL de MeOH y sobre ella se adicionan lentamente a través de un embudo de presión compensada 45.0 mL (722.8 mmol) de CH_3I diluidos en 40.0 mL de MeOH . Casi de inmediato aparece un precipitado amarillento. La mezcla permanece con agitación continua 72 h y entonces se añaden 45.0 ml (722.8 mmol) de CH_3I quedando a continuación con agitación continua hasta completar una semana. El precipitado obtenido se filtra a vacío lavándose con abundante éter dietílico proporcionando 37.1 g de la sal de amonio cuaternario deseada. El filtrado se concentra a vacío y el sólido viscoso obtenido se lava con abundante acetona apareciendo un nuevo precipitado que tras filtrarse y secarse a vacío proporciona 2.0 g más de la sal de amonio (80%).

Finalmente, este sólido, tras disolverlo en metanol, se convierte en el hidróxido correspondiente empleando una resina de intercambio aniónico en exceso de resina 3:1 molar, en agitación, durante 12 horas.

Ejemplo 2. Preparación de zeolita ITQ-62

Se añaden 19,01 g de una disolución del agente director de estructura descrito en el ejemplo 4 ($\text{R}(\text{OH})_2$) que contiene 0.27 equivalentes de hidróxido en 1000 g. A continuación se adicionan 3.46 g de tetraetilortosilicato (TEOS) y 0.34 g de óxido de germanio (GeO_2). Se deja la mezcla evaporando en agitación hasta completa eliminación del etanol procedente de la hidrólisis del TEOS más la cantidad de agua necesaria hasta alcanzar la composición final que se indica. Finalmente, se añade 0.37 g de fluoruro de amonio (NH_4F) disuelto en 2 g de H_2O . Se deja la mezcla evaporando en agitación alcanzar la composición final que se indica. La composición del gel es:



La mezcla obtenida se introduce en un autoclave provisto de una funda interna de politetrafluoretileno y se calienta a 150° C durante 17 días en una estufa provista de un sistema de rotación.

El difractograma de rayos X del sólido obtenido al filtrar, lavar con agua destilada y secar a 100°C se muestra en la figura 5 y presenta el listado de los picos más característicos que aparece en la tabla 4.

10

Tabla 4

2θ	Intensidad Relativa
6.5	100
8.3	87
10.1	19
11.5	3
13.1	22
13.5	9
14.3	3
15.4	77
15.7	5
17.5	11
17.8	16
19.6	17
20.2	32
21.6	62
22.0	8
22.9	11
23.4	21
24.3	9
24.8	15
25.2	11
25.5	49
26.0	7

Ejemplo 3-Preparación de la zeolita ITQ-62 en su forma calcinada.

Un sólido preparado tal y como se describe en el ejemplo 2 se introduce en un horno tubular y se calcina en corriente de aire seco a 650°C durante 5 horas para descomponer la materia orgánica retenida en su interior.

El diagrama de difracción de rayos X de la zeolita ITQ-62 calcinada se muestra en la figura 6 y presenta los picos más característicos que aparece en la tabla 5 e indica que el material es estable durante este proceso.

Tabla 5

2θ	Intensidad Relativa
6.6	100
8.4	61
10.2	1
11.7	4
13.2	5
14.4	2
15.5	21
15.9	2
17.9	1
19.9	2
20.6	5
21.6	18
22.2	2
23.1	3
23.4	5
23.7	4
24.4	3
24.9	4
25.2	4
25.6	8
26.1	3

Ejemplo 4-Preparación de la zeolita ITQ-62

Se añaden 13,33 g de una disolución del agente director de estructura descrito en el ejemplo 1 (R(OH)₂) que contiene 0.30 equivalentes de hidróxido en 1000 g. A continuación se adicionan 3.46 g de tetraetilortosilicato (TEOS) y 0.17 g de óxido de germanio (GeO₂). Se deja la mezcla evaporando en agitación hasta completa eliminación del etanol procedente de la hidrólisis del TEOS más la cantidad de agua necesaria hasta alcanzar la composición final que se indica. Finalmente, se añade 0.33 g de fluoruro de amonio (NH₄F) disuelto en 2 g de H₂O. Se deja la mezcla evaporando en agitación alcanzar la composición final que se indica. La composición del gel es:



La mezcla obtenida se introduce en un autoclave provisto de una funda interna de politetrafluoretileno y se calienta a 150° C durante 7 días en una estufa provista de un sistema de rotación. El sólido obtenido al filtrar, lavar con agua destilada y secar a 100°C, presenta un diagrama de difracción de rayos X que contiene los picos característicos del material ITQ-62.

Ejemplo 5. Preparación de zeolita ITQ-62

Se añaden 14,93 g de una disolución del agente director de estructura descrito en el ejemplo 1 (R(OH)₂) que contiene 0.27 equivalentes de hidróxido en 1000 g. A continuación se adicionan 3.44 g de tetraetilortosilicato (TEOS) y 0.084 g de óxido de germanio (GeO₂). Se deja la mezcla evaporando en agitación hasta completa eliminación del etanol procedente de la hidrólisis del TEOS más la cantidad de agua necesaria hasta alcanzar la composición final que se indica. Finalmente, se añade 0.3 g de fluoruro de amonio (NH₄F) disuelto en 2 g de H₂O. Se deja la mezcla evaporando en agitación alcanzar la composición final que se indica. Se añade una suspensión en agua de 0.05 g de zeolita ITQ-62 preparada tal como se describe en el ejemplo 5. La composición del gel es:



La mezcla obtenida se introduce en un autoclave provisto de una funda interna de politetrafluoretileno y se calienta a 150° C durante 8 días en una estufa provista de un

sistema de rotación. El sólido obtenido al filtrar, lavar con agua destilada y secar a 100°C, presenta un diagrama de difracción de rayos X que contiene los picos característicos del material ITQ-62.

5 **Ejemplo 6. Preparación de zeolita ITQ-62**

Se añaden 14.92 g de una disolución del agente director de estructura descrito en el ejemplo 1 (R(OH)₂) que contiene 0.27 equivalentes de hidróxido en 1000 g. A continuación se añaden 3.45 g de tetraetilortosilicato (TEOS) y 0.17 g de óxido de germanio (GeO₂). Se deja la mezcla evaporando en agitación hasta completa eliminación del etanol procedente de la hidrólisis del TEOS más la cantidad de agua necesaria hasta alcanzar la composición final que se indica. Finalmente, se añade 0.33 g de fluoruro de amonio (NH₄F) disuelto en 2 g de H₂O. Se deja la mezcla evaporando en agitación alcanzar la composición final que se indica. La composición del gel es:

15



La mezcla obtenida se introduce en un autoclave provisto de una funda interna de politetrafluoretileno y se calienta a 175° C durante 7 días en una estufa provista de un sistema de rotación. El sólido obtenido al filtrar, lavar con agua destilada y secar a 100°C, presenta un diagrama de difracción de rayos X que contiene los picos característicos del material ITQ-62.

25 **Ejemplo 7. Preparación de zeolita ITQ-62**

Se añaden 33.58 g de una disolución del agente director de estructura descrito en el ejemplo 1 (R(OH)₂) que contiene 0.27 equivalentes de hidróxido en 1000 g. A continuación se añaden 6.87 g de tetraetilortosilicato (TEOS) y 0.17 g de óxido de germanio (GeO₂) y 0.081g de ácido bórico (H₃BO₃). Se deja la mezcla evaporando en agitación hasta completa eliminación del etanol procedente de la hidrólisis del TEOS más la cantidad de agua necesaria hasta alcanzar la composición final que se indica. Finalmente, se añade 0.64 g de fluoruro de amonio (NH₄F) disuelto en 2 g de H₂O. Se deja la mezcla evaporando en agitación alcanzar la composición final que se indica. La composición del gel es:

35



La mezcla obtenida se introduce en un autoclave provisto de una funda interna de politetrafluoretileno y se calienta a 150° C durante 14 días en una estufa provista de un sistema de rotación. El sólido obtenido al filtrar, lavar con agua destilada y secar a 100°C, presenta un diagrama de difracción de rayos X que contiene los picos característicos del material ITQ-62.

Ejemplo 8. Preparación de zeolita ITQ-62

Se añaden 21,46 g de una disolución del agente director de estructura descrito en el ejemplo 1 (R(OH)₂) que contiene 0.23 equivalentes de hidróxido en 1000 g. A continuación se adicionan 3.45 g de tetraetilortosilicato (TEOS) y 0.18 g de óxido de germanio (GeO₂) y 0.033g de Hidróxido de Aluminio (Al(OH)₃). Se deja la mezcla evaporando en agitación hasta completa eliminación del etanol procedente de la hidrólisis del TEOS más la cantidad de agua necesaria hasta alcanzar la composición final que se indica. Finalmente, se añade 0.34 g de fluoruro de amonio (NH₄F) disuelto en 2 g de H₂O. Se deja la mezcla evaporando en agitación alcanzar la composición final que se indica. La composición del gel es:



La mezcla obtenida se introduce en un autoclave provisto de una funda interna de politetrafluoretileno y se calienta a 150° C durante 12 días en una estufa provista de un sistema de rotación. El sólido obtenido al filtrar, lavar con agua destilada y secar a 100°C, presenta un diagrama de difracción de rayos X que contiene los picos característicos del material ITQ-62.

Ejemplo 9. Preparación de zeolita ITQ-62

Se añaden 13.33 g de una disolución del agente director de estructura descrito en el ejemplo 1 (R(OH)₂) que contiene 0.3 equivalentes de hidróxido en 1000 g. A continuación se adicionan 3.46 g de tetraetilortosilicato (TEOS) y 0.17 g de óxido de germanio (GeO₂). Se deja la mezcla evaporando en agitación hasta completa eliminación del etanol procedente de la hidrólisis del TEOS más la cantidad de agua necesaria hasta alcanzar la composición final que se indica. Finalmente, se añade 0.18 g de una disolución de ácido fluorhídrico (48 % de HF en peso). La composición del gel es:



La mezcla obtenida se introduce en un autoclave provisto de una funda interna de politetrafluoretileno y se calienta a 150° C durante 14 días en una estufa provista de un sistema de rotación. El sólido obtenido al filtrar, lavar con agua destilada y secar a 100°C, presenta un diagrama de difracción de rayos X que contiene los picos característicos del material ITQ-62.

10 Ejemplo 10. Refinamiento de la estructura de una zeolita ITQ-62 según el método de Rietveld.

La estructura de la zeolita ITQ-62 puede ser satisfactoriamente refinada empleando el método de Rietveld aplicado a un diagrama de difracción de Rayos X obtenido de una muestra preparada según se describe en el ejemplo 3. El grupo espacial, los parámetros del refinamiento y las posiciones atómicas en coordenadas cristalográficas (x/a, y/b y z/c) de la zeolita ITQ-62 se muestran en la Tabla 6.

Tabla 6

Grupo espacial: C m m m

20 Parámetros de celda unidad:

a= 21.1537(18) angstroms

b= 17.2740(15) angstroms

c= 7.5875(6) angstroms

alpha=beta=gamma=90°

25 Posiciones atómicas:

	Si1/Ge1	0.12141(4)	0.41104(4)	0.20259(8)
	Si2/Ge2	0.23315(5)	0.08903(4)	0.20277(8)
	Si3/Ge3	0.07274(3)	0.30510(7)	0.50000
	Si4/Ge4	0.19023(3)	0.19941(5)	0.50000
30	O1	0.0779(8)	0.3512(9)	0.3160(16)
	O2	0.1919(3)	0.4074(10)	0.2783(17)
	O3	0.1943(9)	0.1556(8)	0.3108(15)
	O4	0.1149(6)	0.2267(9)	0.50000
	O5	0.1079(13)	0.3850(15)	0.0000
35	O6	0.2233(16)	0.1228(12)	0.0000
	O7	0.0999(12)	0.5000	0.234(4)

ES 2 650 083 A1

O8	0.2082(11)	0.0000	0.237(4)
O9	0.0000	0.2757(15)	0.50000
O10	0.2500	0.25000	0.50000

REIVINDICACIONES

1.- Un material cristalino microporoso, caracterizado porque posee la siguiente composición química en su forma calcinada:



donde:

X es un elemento trivalente seleccionado entre Al, B, Fe, In, Ga, Cr y combinaciones de los mismos;

10 Y es un elemento tetravalente seleccionado entre Ti, Sn, Zr, V y combinaciones de los mismos;

Z es un elemento tetravalente seleccionado entre Si, Ge y combinaciones de los mismos;

el valor de $(y+z)/x$ está comprendido entre 9 e infinito;

el valor de z/y está comprendido entre 10 e infinito;

15 y porque los elementos X, Y y Z se localizan en posiciones cristalinas como las descritas en la tabla 1.

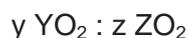
2.- Un material cristalino microporoso según la reivindicación 1, caracterizado porque presenta un diagrama de difracción como el descrito en la tabla 3.

20 3.- Un material cristalino microporoso según las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado porque el valor de $(y+z)/x$ está comprendido entre 20 e infinito; el valor de z/y está comprendido entre 15 e infinito.

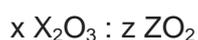
25 4.- Un material cristalino microporoso según las reivindicaciones 1 a 3, caracterizado porque X está seleccionado entre Al, B y combinaciones de los mismos.

5.- Un material cristalino microporoso según las reivindicaciones 1 a 3, caracterizado porque Y está seleccionado entre Ti, Sn, y combinaciones de los mismos.

30 6.- Un material cristalino microporoso según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, caracterizado porque x es igual a cero y posee la siguiente composición química:



35 7.- Un material cristalino microporoso según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, caracterizado porque y es igual a cero y posee la siguiente composición química:



donde el valor de z/x está comprendido entre 9 e infinito.

8.- Un material cristalino microporoso según una de las reivindicaciones 1 a 7, caracterizado porque posee una composición química en su forma sin calcinar:



donde:

R es un agente director de estructura;

el valor de $n/(x+y+z)$ está comprendido entre 1 y 0,001;

y porque tiene un patrón de rayos X representado en la tabla 2.

10

9.- Un material cristalino microporoso según la reivindicación 8, caracterizado porque el agente director de estructura R contiene N.

10.- Un material cristalino microporoso según la reivindicación 9, caracterizado porque R está seleccionado entre una sal de un catión alquilamonio, un polication alquilamonio y combinaciones de los mismos.

15

11.- Un material cristalino microporoso según la reivindicación 10, caracterizado porque R es un polication alquilamonio.

20

12. Un material cristalino microporoso según la reivindicación 11, caracterizado porque R está seleccionado entre hidróxido de $N^2, N^2, N^2, N^5, N^5, N^5, 3a, 6a$ -octametiloctahidropentaleno-2,5-diamonio, cualquiera de sus sales o combinaciones de los mismos.

13.- Un material cristalino microporoso según cualquiera de las reivindicaciones 8 a 12, caracterizado porque x es igual a cero y por la siguiente composición química:

25



donde el valor de $n/(y+z)$ está comprendido entre 1 y 0,001.

14.- Un material cristalino microporoso según cualquiera de las reivindicaciones 8 a 12, caracterizado porque y es igual a cero y por la siguiente composición química:

30



donde el valor de z/x está comprendido entre 9 e infinito y el valor de $n/(x+z)$ está comprendido entre 1 y 0,001.

35

15.- Un material cristalino microporoso según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque posee átomos en coordinación tetraédrica unidos a través de átomos de oxígeno puente que conectan átomos en coordinación tetraédrica contiguos, conteniendo 48 átomos en coordinación tetraédrica en su celda unidad, denominados T1, T2, T3, T4 hasta T48, que están localizados en las posiciones cristalográficas con coordenadas atómicas cartesianas x , y y z que se muestran en la Tabla 1.

16.- Procedimiento de preparación del material descrito según las reivindicaciones 1 a 15, caracterizado porque comprende al menos los siguientes pasos:

a) preparación de una mezcla que comprende, al menos, H_2O , una fuente de iones fluoruro, un óxido u otra fuente del material tetravalente Z, un agente director de estructura (R), una fuente del elemento trivalente X, un óxido u otra fuente del material tetravalente Y, donde la mezcla de síntesis tiene una composición molar de óxidos en los siguientes rangos:

$(YO_2+ZO_2)/X_2O_3$ mayor de 2

$H_2O/(YO_2+ZO_2)$ entre 1-50

$R/(YO_2 + ZO_2)$ entre 0.05-3.0

$F/(YO_2+ZO_2)$ entre 0.01-3.0

ZO_2/YO_2 mayor de 5

SiO_2/GeO_2 mayor de 1

b) mantener la mezcla a una temperatura seleccionada entre 80 y 200°C hasta que se formen los cristales del material.

c) recuperación del material cristalino.

17.- Procedimiento de obtención de un material según la reivindicación 16, caracterizado porque Z está seleccionado entre Si, Ge y combinaciones de los mismos, X está seleccionado entre Al, B, Fe, In, Ga, Cr y combinaciones de los mismos e Y está seleccionado entre Ti, Sn, Zr, V y combinaciones de los mismos.

18.- Procedimiento de obtención de un material según la reivindicación 17, caracterizado porque X está seleccionado entre Al, B, y combinaciones de los mismos.

19.- Procedimiento de obtención de un material según la reivindicación 17, caracterizado porque Y está seleccionado entre Ti, Sn, y combinaciones de los mismos.

20.- Procedimiento de obtención de un material según las reivindicaciones 16 a 19, caracterizado porque el agente director de estructura R es un compuesto que contiene N.

5 21.- Procedimiento de obtención de un material según la reivindicación 20, caracterizado porque R está seleccionado entre una sal de un catión alquilamonio, un polication alquilamonio o combinaciones de los mismos.

10 22.- Procedimiento de obtención de un material según la reivindicación 21, caracterizado porque R es un polication alquilamonio.

15 23.- Procedimiento de obtención de un material según la reivindicación 22, caracterizado porque R está seleccionado entre hidróxido de $N^2, N^2, N^2, N^5, N^5, N^5, 3a, 6a$ -octametiloctahidropentaleno-2,5-diamonio, cualquiera de sus sales y combinaciones de los mismos.

20 24.- Procedimiento de obtención de un material según cualquiera de las reivindicaciones 16 a 23, caracterizado porque comprende, además, una etapa calcinación del material cristalino obtenido.

25 25.- Procedimiento de obtención de un material según la reivindicación 24, caracterizado porque la calcinación se lleva a cabo a una temperatura entre 200 y 1200°C.

30 26.- Procedimiento de obtención de un material según cualquiera de las reivindicaciones 16 a 25, caracterizado porque comprende, además, uno o varios procesos post-síntesis.

35 27.- Procedimiento de obtención de un material según la reivindicación 26, caracterizado porque dicho tratamiento post-síntesis comprende al menos:

a) suspender el material en una disolución que contiene al menos un elemento trivalente X seleccionado entre Al, Ga, B, Cr, Fe, In o mezclas de ellos;

b) recuperación del sólido mediante filtración, centrifugación o cualquier técnica de separación de sólidos de líquidos;

c) activación del material mediante calcinación a temperaturas superiores a 200°C.

28.- Procedimiento de obtención de un material según la reivindicación 27, caracterizado porque la disolución del paso a) está seleccionada entre una disolución acuosa, alcohólica, orgánica y combinaciones de las mismas.

5 29.- Uso de un material descrito según las reivindicaciones 1 a 15 y obtenido según el proceso descrito en las reivindicaciones 16 a 28 como catalizador.

30.-Uso del material descrito según la reivindicación 29 como catalizador en procesos de conversión de hidrocarburos.

10

31.- Uso del material descrito según la reivindicación 29 como catalizador en procesos de desparafinado de hidrocarburos.

15

32.- Uso del material descrito según la reivindicación 29 como catalizador en procesos de conversión de alcoholes.

33.- Uso del material descrito según la reivindicación 29 como catalizador en procesos de conversión de alcoholes con menos de cuatro carbonos en olefinas.

20

34.- Uso del material descrito según la reivindicación 29 como catalizador en procesos de eliminación de contaminantes nitrogenados en corrientes gaseosas o líquidas,

35.- Uso del material descrito según la reivindicación 29 como catalizador en procesos de eliminación de óxidos de nitrógeno de corrientes gaseosas.

25

36.- Uso del material descrito según la reivindicación 29 como catalizador en procesos de eliminación de óxidos de nitrógeno de corrientes gaseosas en presencia de gases reductores.

30

37.- Uso del material descrito según la reivindicación 36 donde el gas reductor es amoniaco.

38.- Uso del material descrito según la reivindicación 36 donde el gas reductor es, al menos, un hidrocarburo.

35

39.- Uso de un material descrito según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 15 y obtenido según el proceso descrito en las reivindicaciones 16 a 28 como adsorbente.

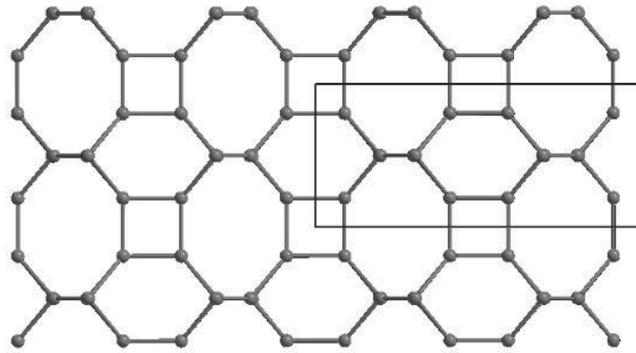


FIG.1

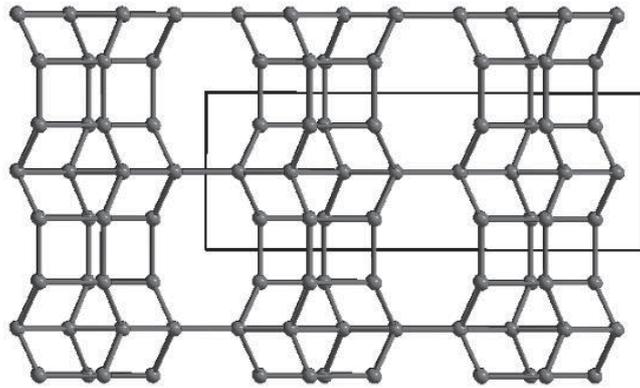


FIG.2

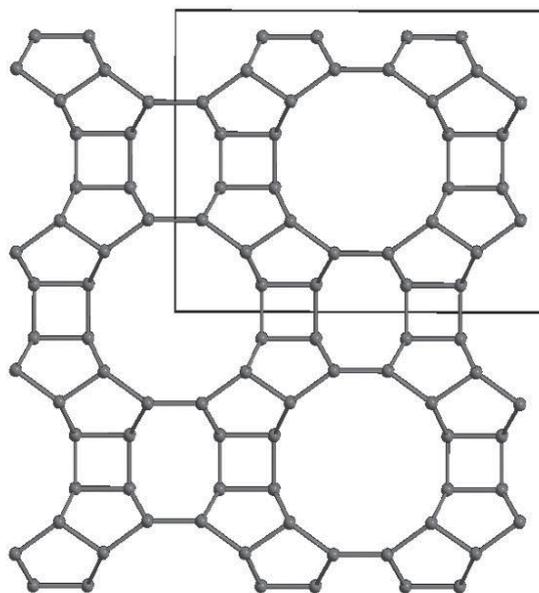


FIG.3

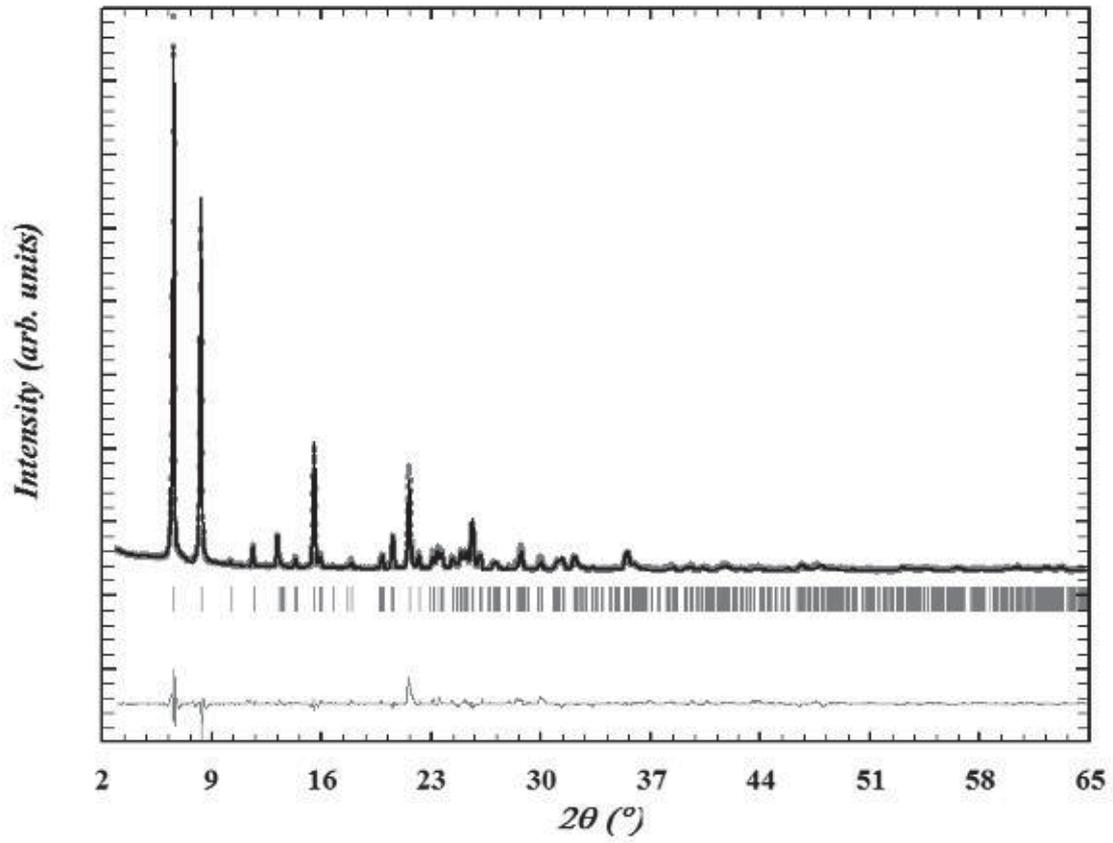


FIG.4

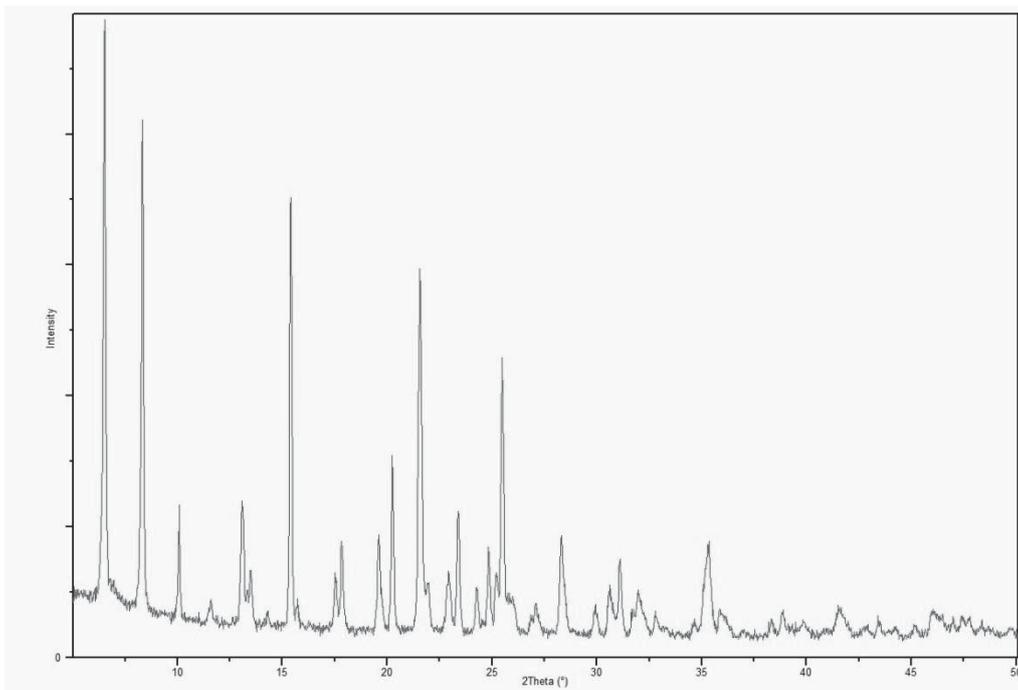


FIG.5

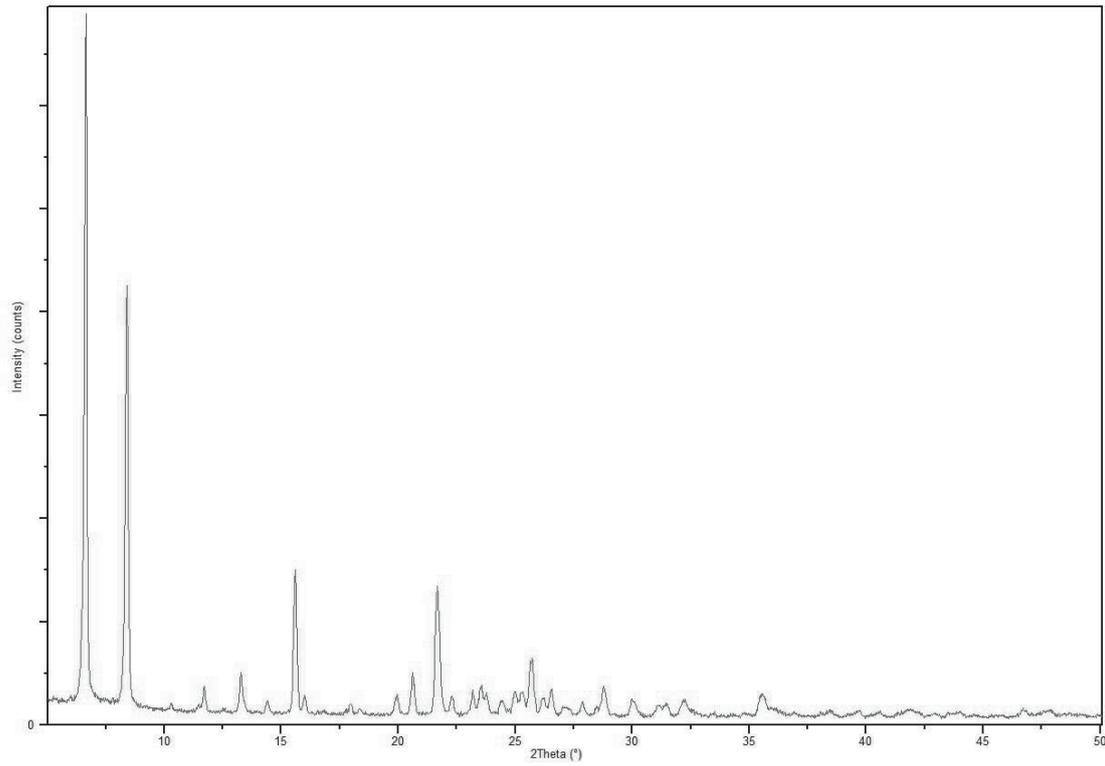


FIG.6

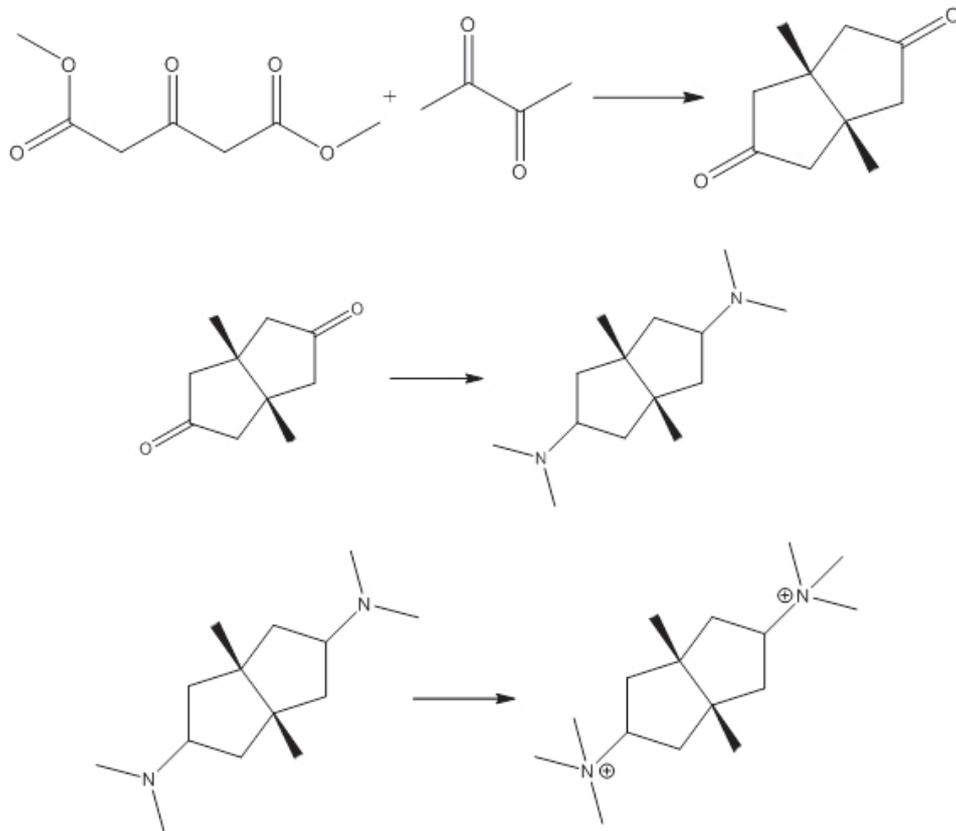


FIG.7