

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 699 702**

51 Int. Cl.:

**B01J 29/70** (2006.01)

**C07C 2/66** (2006.01)

**C01B 39/46** (2006.01)

**C01B 39/48** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **15.07.2009 PCT/US2009/050724**

87 Fecha y número de publicación internacional: **04.02.2010 WO10014404**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **15.07.2009 E 09790480 (9)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **29.08.2018 EP 2331465**

54 Título: **Procedimiento de preparación de compuestos alquilaromáticos usando EMM-13**

30 Prioridad:

**28.07.2008 US 84171 P**  
**02.10.2008 EP 08165754**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**12.02.2019**

73 Titular/es:

**EXXONMOBIL CHEMICAL PATENTS INC.**  
**(100.0%)**  
**5200 Bayway Drive**  
**Baytown, TX 77520, US**

72 Inventor/es:

**HELTON, TERRY, E. y**  
**VINCENT, MATTHEW, J.**

74 Agente/Representante:

**ELZABURU, S.L.P**

ES 2 699 702 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).

## DESCRIPCIÓN

Procedimiento de preparación de compuestos alquilaromáticos usando EMM-13

**Campo de la invención**

5 La presente descripción se refiere a un procedimiento para producir compuestos monoalquilaromáticos, por ejemplo etilbenceno, cumeno y sec-butilbenceno, utilizando una composición de tamiz molecular designada como EMM-13 que es un material de la familia MCM-22 que tiene características únicas de DRX.

**Antecedentes de esta divulgación**

10 Se ha demostrado en el pasado que los materiales de tamiz molecular, tanto naturales como sintéticos, tienen propiedades catalíticas para varios tipos de conversión de hidrocarburos. Los tamices moleculares que se utilizan en catálisis incluyen cualquiera de los tamices moleculares cristalinos sintéticos o naturales. Ejemplos de estas zeolitas incluyen zeolitas de poro grande, zeolitas de tamaño de poro intermedio, y zeolitas de poro pequeño. Estas zeolitas y sus isotipos se describen en "Atlas of Zeolite Framework Types", ed., W. H. Meier, D. H. Olson y Ch. Baerlocher, Elsevier, Quinta Edición, 2001. Una zeolita de poro grande generalmente tiene un tamaño de poro de al menos aproximadamente 7 Å e incluye zeolitas de tipo estructural LTL, VFI, MAZ, FAU, OFF, \*BEA y MOR (Comisión de la IUPAC de Nomenclatura de Zeolita). Los ejemplos de zeolitas de poros grandes incluyen mazzita, offretita, zeolita L, VPI-5, zeolita Y, zeolita X, omega y Beta. Una zeolita de tamaño de poro intermedio generalmente tiene un tamaño de poro de aproximadamente 5 Å a menos de aproximadamente 7 Å e incluye, por ejemplo, zeolitas de tipo estructural MFI, MEL, EUO, MTT, MFS, AEL, AFO, HEU, FER, MWV y TON (IUPAC Comisión de Nomenclatura de Zeolita). Los ejemplos de zeolitas de tamaño de poro intermedio incluyen ZSM-5, ZSM-11, ZSM-22, MCM-22, silicalita 1 y silicalita 2. Una zeolita de tamaño de poro pequeño tiene un tamaño de poro de aproximadamente 3 Å a menos de aproximadamente 5,0 Å e incluye, por ejemplo, zeolitas de tipo estructural CHA, ERI, KFI, LEV, SOD y LTA (Comisión de la IUPAC de Nomenclatura de Zeolita). Ejemplos de zeolitas de poro pequeño incluyen ZK-4, ZSM-2, SAPO-34, SAPO-35, ZK-14, SAPO-42, ZK-21, ZK-22, ZK-5, ZK-20, zeolita A, chabazita, zeolita T, gmelinita, ALPO-17 y clinoptilolita.

25 El documento de Patente de EE.UU. núm. 4.439.409 se refiere a una composición de tamiz molecular cristalina de materia llamada PSH-3 y su síntesis a partir de una mezcla de reacción para una reacción hidrotérmica que contiene hexametilamina, un compuesto orgánico que actúa como agente director para la síntesis de la MCM-56 (Patente de EE.UU. núm. 5.362.697). La hexametilamina también se muestra para uso en la síntesis de tamices moleculares cristalinos MCM-22 (Patente de EE.UU. núm. 4.954.325) y MCM-49 (Patente de EE.UU. núm. 5.236.575). Una composición de tamiz molecular de materia denominada zeolita SSZ-25 (Patente de EE.UU. núm. 4.826.667) se sintetiza a partir de una mezcla de reacción para la reacción hidrotérmica que contiene un ion de amonio cuaternario adamantano. El documento de Patente de EE.UU. núm. 6.077.498 se refiere a una composición de tamiz molecular cristalina de materia denominada ITQ-1 y su síntesis a partir de una mezcla de reacción para una reacción hidrotérmica que contiene uno o varios aditivos orgánicos.

35 El documento de Solicitud de Patente de EE.UU. núm. US 2008/0027259 A1 describe una nueva composición de tamiz molecular designada como EMM-10-P, que tiene, en su forma sintetizada, un patrón de difracción de rayos X que incluye máximos de distancia interplanar  $d$  a  $13,18 \pm 0,25$  y  $12,33 \pm 0,23$  Angstroms, donde el pico de intensidad del máximo de distancia interplanar  $d$  a  $13,18 \pm 0,25$  Angstroms es al menos tan grande como el 90% del pico de intensidad del máximo de distancia interplanar  $d$  a  $12,33 \pm 0,23$  Angstroms. El documento de Solicitud de Patente de EE.UU. núm. US 2008/0027256 A1 describe una nueva composición de tamiz molecular designada como EMM-10, en su forma intercambiada con amonio o en su forma calcinada, que comprende celdas unitarias con topología MWW, dicho tamiz molecular cristalino se caracteriza además por rayos de difracción de la disposición de la celda unitaria en la dirección  $c$ . El tamiz molecular cristalino se caracteriza además por los patrones  $hk0$  arqueados del patrón de difracción de electrones. El tamiz molecular cristalino se caracteriza además por los rayos en el patrón de difracción de electrones a lo largo de la dirección  $c^*$ . El documento de Solicitud de Patente de EE.UU. núm. US 2008/0045768 A1 describe un nuevo tamiz molecular de la familia MCM-22 cristalino que tiene, en su forma sintetizada, un patrón de difracción de rayos X que incluye un pico con un máximo de distancia interplanar  $d$  de  $12,33 \pm 0,23$  Angstroms, un pico distinguible con un máximo de distancia interplanar  $d$  entre 12,57 hasta aproximadamente 14,17 Angstroms y un pico no discreto en un máximo de distancia interplanar  $d$  entre 8,8 a 11,0 Angstroms, en donde la intensidad máxima del máximo de distancia interplanar  $d$  entre 12,57 a aproximadamente 14,17 Angstroms es menos del 90% de la intensidad máxima del máximo de distancia interplanar a  $12,33 \pm 0,23$  Angstroms.

El término "material de la familia MCM-22" o "tamiz molecular de la familia MCM-22"), como se usa en el presente documento, incluye:

55 (i) tamices moleculares hechos a partir de un bloque de construcción cristalino de primer grado común "celda unitaria que tiene la topología de estructura MWW". Una celda unitaria es una disposición espacial de átomos que se organiza en mosaico en un espacio tridimensional para describir el cristal como se describe en "Atlas of Zeolite Framework Types", Quinta Edición, 2001;

(ii) tamices moleculares hechos a partir de un bloque de construcción común de segundo grado, un mosaico

bidimensional de dichas celdas unitarias tipo MWW, que forman una "monocapa de un grosor de celda unitaria", preferiblemente un grosor de celda de c-unidad;

(iii) tamices moleculares hechos de bloques de construcción comunes de segundo grado, "capas de uno o más de un grosor de celda unitaria", donde la capa de más de un grosor de celda unitaria está hecha de apilar, empaquetar o unir al menos dos monocapas de celda de una unidad de espesor de celdas unitarias con la topología de estructura MWW. El apilamiento de dichos bloques de construcción de segundo grado puede ser regular, irregular, aleatorio o cualquier combinación de estos; o

(iv) Tamices moleculares fabricados por cualquier combinación bidimensional o tridimensional regular o aleatoria de celdas unitarias que tengan la topología de estructura MWW.

Los materiales de la familia MCM-22 se caracterizan por tener un patrón de difracción de rayos X que incluye máximos de distancia interplanar  $d$  en  $12,4 \pm 0,25$ ,  $3,57 \pm 0,07$  y  $3,42 \pm 0,07$  Angstroms (ya sea calcinado o sintetizado). Los materiales de la familia MCM-22 también se pueden caracterizar por tener un patrón de difracción de rayos X que incluye máximos de distancia interplanar  $d$  en  $12,4 \pm 0,25$ ,  $6,9 \pm 0,15$ ,  $3,57 \pm 0,07$  y  $3,42 \pm 0,07$  Angstroms (ya sea calcinado o sintetizado). Los datos de difracción de rayos X utilizados para caracterizar el tamiz molecular se obtienen mediante técnicas estándar que utilizan el doblete K-alfa de cobre como la radiación incidente y un difractómetro equipado con un contador de centelleo y un ordenador asociado como sistema de recolección. Los materiales que pertenecen a la familia MCM-22 incluyen MCM-22 (descrito en el documento de Patente de EE.UU. núm.4.954.325), PSH-3 (descrito en el documento de Patente de EE.UU. núm. 4.439.409), SSZ-25 (descrito en el documento de Patente de EE.UU. núm. 4.826.667), ERB-1 (descrito en la Patente Europea núm. 0293032), ITQ-1 (descrito en el documento de Patente de EE.UU. núm. 6.077.498), ITQ-2 (descrito en la publicación de patente internacional núm. WO97/17290), ITQ-30 (descrito en la publicación de patente internacional núm. WO2005118476), MCM-36 (descrito en el documento de Patente de EE.UU. núm. 5.250.277), MCM-49 (descrito en el documento de Patente de EE.UU. núm. 5.236.575) y MCM-56 (descrito en el documento de Patente de EE.UU. núm. 5.362.697). El documento US 2008/0027256 A1 se refiere a un tamiz molecular cristalino en su forma intercambiada con amonio o en su forma calcinada, que comprende celdas unitarias con topología MWW. Los documentos US 2008/0027260 A1 y WO 2008/013644 A1 se refieren a un tamiz molecular de la familia MCM-22 cristalino que tiene una morfología de agregados plaquetarios, en donde más del 50% en peso del tamiz molecular tiene un diámetro de cristal superior a 1  $\mu\text{m}$ .

Debe apreciarse que los tamices moleculares de la familia MCM-22 descritos anteriormente se distinguen de los catalizadores de alquilación de zeolita de poros grandes convencionales, tales como mordenita, en que los materiales MCM-22 tienen cavidades de superficie de 12 anillos que no se comunican con el sistema interno de poros de 10 anillos del tamiz molecular.

Los materiales zeolíticos designados por IZA-SC como de la topología de MWW son materiales de múltiples capas que tienen dos sistemas de poros que surgen de la presencia de anillos de 10 y 12 miembros. El Atlas of Zeolite Framework Types clasifica cinco materiales con nombres diferentes que tienen esta misma topología: MCM-22, ERB-1, ITQ-1, PSH-3 y SSZ-25.

Se ha encontrado que los tamices moleculares de la familia MCM-22 son útiles en una variedad de procedimientos de conversión de hidrocarburos. Ejemplos de tamices moleculares de la familia MCM-22 son MCM-22, MCM-49, MCM-56, ITQ-1, PSH-3, SSZ-25 y ERB-1. Tales tamices moleculares son útiles para la alquilación de compuestos aromáticos. Por ejemplo, el documento de Patente de EE.UU. núm. 6 936 744 describe un procedimiento para producir un compuesto aromático monoalquilaromático, particularmente cumeno, que comprende la etapa de poner en contacto un compuesto aromático polialquilado con un compuesto aromático alquilable en condiciones de fase líquida al menos parcial y en presencia de un catalizador de transalquilación para producir el compuesto aromático monoalquilaromático, donde el catalizador de transalquilación comprende una mezcla de al menos dos tamices moleculares cristalinos diferentes, donde cada uno de los tamices moleculares se selecciona de zeolita beta, zeolita Y, mordenita y un material que tiene un patrón de difracción de rayos X que incluye un máximo de distancia interplanar  $d$  a  $12,4 \pm 0,25$ ,  $6,9 \pm 0,15$ ,  $3,57 \pm 0,07$  y  $3,42 \pm 0,07$  Angstroms.

Un informe de J. Ruan, P. Wu, B. Slater, L. Wu, J. Xiao, Y. Liu, M. He, O. Terasaki en la 15 Conferencia de IZA en Beijing en 2007 describió los materiales ISE-MWW e ISE-FER, el primero hecho de material MCM-22-P como material de partida. El documento de solicitud de Patente de EE.UU. núm. de publicación 2005/0158238 a Tatsumi et al. se describe la sustancia de tipo zeolita MWW. El documento de solicitud de Patente de EE.UU. núm. de publicación 2004/0092757 a Oguchi et al. describió el catalizador de tipo titanosilicato de tipo MWW cristalino. Un informe de W. Fan, P. Wu, S. Namba y T. Tatsumi (J. Catalyst 243 (2006) 183-191) describió un nuevo tamiz molecular de titanosilicato con una estructura análoga al precursor laminar de tipo MWW. J. Ruan, P. Wu B. Slater y O. Terasaki divulgaron la estructura detallada de Ti-YNU-1 (Angew. Chem. Int. Ed., 2005, 44, 6719) similar a ISE-MWW. Otro informe por P. Wu, J. Ruan, L. Wang, L. Wu, Y. Wang, Y. Liu, W. Fan, M. He, O. Terasaki y T. Tatsumi describió una metodología para sintetizar aluminosilicatos cristalinos con ventanas de poros expandidos a través de la alcoxilación molecular de precursores laminares zeolíticos (J. Am. Chem. Soc. 2008, 130, 8178-8187).

Este material estrechamente relacionado puede distinguirse además comparando el patrón de difracción de DRX para

5 los máximos de distancia interplanar d correspondientes a las reflexiones (002), (100), (101) y (102) para materiales tanto sintetizados como calcinados. El máximo de distancia interplanar d que corresponde a la reflexión (002) está típicamente en el intervalo de 14,17 a 12,57 Angstroms (~6,15-7,05 grados 2-θ Cu Kα). El máximo de distancia interplanar d correspondiente a la reflexión (100) está típicamente en el intervalo de 12,1 a 12,56 Angstroms (~7,3-7,05 grados 2-θ Cu Kα). El máximo de distancia interplanar d correspondiente a la reflexión (101) está típicamente en el intervalo de 10,14 a 12,0 Angstroms (8,7-7,35 grados 2-θ Cu Kα). El máximo de distancia interplanar d correspondiente a la reflexión (102) está típicamente en el intervalo de 8,66 a 10,13 Angstroms (10,2-8,7 grados 2-θ Cu Kα). La siguiente tabla (Tabla 1) resume las diferencias entre MCM-22, MCM-49, EMM-10, MCM-56 y el material de titanosilicato descrito por Tatsumi et al. basado en la existencia y/o el aspecto del patrón de difracción de DRX para los máximos de distancia interplanar d correspondientes a las reflexiones (002), (100), (101) y (102) para materiales tanto sintetizados como calcinados.

Tabla 1

DRX	Sintetizado				Calcinado			
	(002)	(100)	(101)	(102)	(002)	(100)	(101)	(102)
MCM-22	MCM-22-P				MCM-22			
	Sí	Sí	Sí	Sí	No	Sí	Sí	Sí
	Los cuatro picos están resueltos. Existe un valle entre (101) y (102), en donde la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo es menos del 50% del punto a la misma distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).				El pico correspondiente a (002) no es visible. Los otros tres picos están resueltos. Existe un valle entre (101) y (102), en donde la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo es menos del 50% del punto a la misma distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).			
EMM-10	EMM-10-P				EMM-10			
	Sí	Sí	No discreto		Sí	Sí	No discreto	
	Tanto el pico (002) como el pico (100) están resueltos, donde la intensidad máxima para (002) es al menos tan grande como el 90% de la intensidad máxima de la distancia interplanar d para (100). Además, los picos correspondientes a (101) y (102) no son discretos o exhiben un valle, pero con la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo, no siendo menos del 50% del punto a la misma distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).				El pico correspondiente a (002) no es visible. El pico correspondiente a (100) está bien resuelto. Y, los picos correspondientes a (101) y (102) no son discretos o exhiben un valle, pero con la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo, no siendo menos del 50% del punto a la misma distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).			
Material de la familia MCM-22 como se describe en el documento de Solicitud de Patente de EE.UU. núm. US 2008/00457 68 A1	Sintetizado				Calcinado			
	Sí	Sí	Sí	Sí	No	Sí	Sí	Sí
	Los picos correspondientes a (002) y (100) están bien resueltos Y, los picos correspondientes a (101) y (102) son picos no discretos con un máximo de distancia interplanar d entre 8,8 y 11 Angstroms, donde la intensidad máxima de (002) es menor que el 90% de la intensidad máxima de (100)				El pico correspondiente a (002) no es visible. Los otros tres picos están resueltos. Existe un valle entre (101) y (102), donde la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo es menos del 50% del punto en la misma distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).			
MCM-49	MCM-49-P				MCM-49			
	No	Sí	Sí	Sí	No	Sí	Sí	Sí
	El pico correspondiente a (002) no es visible o se ve como un pico de hombro. El pico correspondiente a (100) está bien resuelto. Y,				El pico correspondiente a (002) no es visible o como un pico de hombro. El pico correspondiente a (100) está bien resuelto. Y,			

	los picos correspondientes a (101) y (102) están resueltos o exhiben un valle pero con la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo que no sea mayor al 50% del punto en el mismo distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).	los picos correspondientes a (101) y (102) están resueltos o exhiben un valle pero con la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo que no sea mayor al 50% del punto en el mismo distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).						
MCM-56	MCM-56-P			MCM-56				
	No	Sí	no discreto	No	Sí	no discreto		
	El pico correspondiente a (002) no es visible. El pico correspondiente a (100) está bien resuelto. Los picos correspondientes a (101) y (102) son dispersiones no discretas.			El pico correspondiente a (002) no es visible. El pico correspondiente a (100) está bien resuelto. Los picos correspondientes a (101) y (102) no son discretos o muestran un valle, pero con la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo, no es inferior al 50% del punto en la misma distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).				
Material MWW	Precursor (US 20050158238, Fig. 4)				Calcinado (US 20050158238 Fig. 2)			
	Sí	Sí	Sí	Sí	No	Sí	Sí	Sí
	Los cuatro picos están resueltos. Existe un valle entre (101) y (102), en donde la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo es menos del 50% del punto en la misma distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).				Sólo se resuelven tres picos. Existe un valle entre (101) y (102), en donde la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo es menos del 50% del punto en la misma distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).			
Ti-MCM-22	Precursor (J. Catal., Tabla 1)				Calcinado (US20050158238 Figura 1)			
	Sí	Sí	Sí	Sí	Si no	Sí	Sí	Sí
	Los cuatro picos reportados para Si/Ti = 106.				Los cuatro picos se resuelven para Si/Ti superior a 70. Sólo tres picos para Si/Ti menos de 70. Existe un valle entre (101) y (102), en donde la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo es menos del 50% del punto en la misma distancia interplanar d del DRX en la línea que conecta los máximos para (101) y (102).			

Se sabe que la morfología de los cristales, el tamaño y la agregación/aglomeración, o la nueva difracción de rayos X pueden afectar el comportamiento del catalizador, especialmente con respecto a la actividad y estabilidad del catalizador.

- 5 Los compuestos alquilaromáticos, por ejemplo, etilbenceno y cumeno, son productos químicos valiosos que se utilizan industrialmente para la producción de monómero de estireno y la coproducción de fenol y acetona, respectivamente. De hecho, una ruta común para la producción de fenol comprende un procedimiento que implica la alquilación de benceno con propileno para producir cumeno, seguido de la oxidación del cumeno al hidroperóxido correspondiente, y luego la escisión del hidroperóxido para producir cantidades molares iguales de fenol y acetona. El etilbenceno puede producirse por varios procedimientos químicos diferentes. Un procedimiento que ha alcanzado un grado significativo de éxito comercial es la alquilación en fase de vapor de benceno con etileno en presencia de un catalizador de zeolita ZSM-5 sólido y ácido. Ejemplos de tales procedimientos de producción de etilbenceno se describen en los documentos de Patentes de EE.UU. núm. 3.751.504 (Keown), 4.547.605 (Kresge) y 4.016.218 (Haag).

- 15 Otro procedimiento que ha logrado un éxito comercial significativo es el procedimiento en fase líquida para producir etilbenceno a partir de benceno y etileno, ya que opera a una temperatura más baja que la contraparte de la fase de vapor y, por lo tanto, tiende a dar como resultado rendimientos más bajos de los subproductos. Por ejemplo, el documento de Patente de EE.UU. núm. 4.891.458 (Innes) describe la síntesis en fase líquida de etilbenceno con zeolita Beta, mientras que el documento Patente EE.UU. núm. 5.334.795 (Chu) describe el uso de MCM-22 en la síntesis en fase líquida de etilbenceno. El documento US 5.401.896 describe un procedimiento para la alquilación de un compuesto aromático alquilable con un agente alquilante de cadena relativamente larga para producir un producto alquilaromático de cadena larga que emplea un catalizador de alquilación que comprende un material cristalino poroso particular designado MCM-49 bajo condiciones de reacción de alquilación.

El cumeno se ha producido comercialmente durante muchos años por la alquilación en fase líquida de benceno con propileno sobre un catalizador de Friedel-Crafts, particularmente ácido fosfórico sólido o cloruro de aluminio. Más recientemente, sin embargo, se ha encontrado que los sistemas catalizadores basados en zeolita son más activos y selectivos para la propilación de benceno a cumeno. Por ejemplo, el documento de Patente de EE.UU. núm. 4.992.606 (Kushnerick) describe el uso de MCM-22 en la alquilación en fase líquida de benceno con propileno.

Los procedimientos de alquilación existentes para producir compuestos alquilaromáticos, por ejemplo, etilbenceno y cumeno, producen inherentemente especies polialquiladas así como el producto monoalquilado deseado. Por lo tanto, es normal transalquilar las especies polialquiladas con una alimentación aromática adicional, por ejemplo, benceno, para producir un producto mono-alquilaromático adicional, por ejemplo etilbenceno o cumeno, ya sea reciclando la especie polialquilada al reactor de alquilación o, más frecuentemente, alimentando las especies polialquiladas a un reactor de transalquilación separado. Ejemplos de catalizadores que se han utilizado en la alquilación de especies aromáticas, tales como la alquilación de benceno con etileno o propileno, y en la transalquilación de especies polialquiladas, tales como polietilbencenos y poliisopropilbencenos, se enumeran en el documento de Patente de EE.UU. núm. 5.557.024 (Cheng) e incluyen MCM-49, MCM-22, PSH-3, SSZ-25, zeolita X, zeolita Y, zeolita Beta, mordenita desaluminada con ácido y mordenita TEA. La transalquilación sobre una forma de cristal pequeño (<0.5 micras) de TEA-mordenita también se describe en el documento de Patente de EE.UU. núm. 6.984.764 (Roth et al).

Cuando la etapa de alquilación se realiza en fase líquida, también es deseable realizar la etapa de transalquilación en condiciones de fase líquida. Sin embargo, al operar a temperaturas relativamente bajas, los procedimientos en fase líquida imponen mayores requisitos sobre el catalizador, particularmente en la etapa de transalquilación donde las especies polialquiladas voluminosas deben convertirse en productos monoalquilaromáticos adicionales sin producir subproductos no deseados. Esto ha demostrado ser un problema importante en el caso de la producción de cumeno, donde los catalizadores existentes carecen de la actividad deseada o han dado como resultado la producción de cantidades significativas de subproductos como etilbenceno y n-propilbenceno.

Existe, por lo tanto, la necesidad de un nuevo procedimiento para producir compuestos monoalquilaromáticos con tamiz molecular cristalino.

#### Compendio de esta divulgación

En algunas realizaciones, esta descripción se refiere a un procedimiento para fabricar un compuesto monoalquilaromático, comprendiendo dicho procedimiento poner en contacto un material de alimentación que comprende un compuesto aromático alquilable y un agente alquilante en condiciones de reacción de alquilación con un catalizador que comprende un tamiz molecular que tiene una estructura de átomos tetraédricos puenteado por átomos de oxígeno, la estructura del átomo tetraédrico se define por una celda unitaria con coordenadas atómicas en nanómetros que se muestran en la tabla que se menciona en las reivindicaciones o en la Tabla 3 a continuación. El tamiz molecular tiene además, en su forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye picos con un máximo de distancia interplanar  $d$  de  $13,18 \pm 0,25$ ,  $12,33 \pm 0,23$ ,  $11,05 \pm 0,2$  y  $9,31 \pm 0,2$  Angstroms, en donde los picos con un máximo de distancia interplanar  $d$  de  $11,05 \pm 0,2$  y  $9,31 \pm 0,2$  Angstroms muestran un valle en el medio y la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo de dicho valle es menor que el 50% del punto de intensidad en la misma distancia interplanar  $d$  DRX en la línea que conecta los máximos de distancia interplanar  $d$  a  $11,05 \pm 0,2$  y  $9,31 \pm 0,2$  Angstroms.

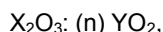
En algunas realizaciones, dicho tamiz molecular tiene menos de 1,6% en peso de Ti.

En otras realizaciones, los compuestos monoalquilaromáticos comprenden al menos uno de etilbenceno, cumeno y sec-butilbenceno.

En algunos aspectos, el tamiz molecular comprende además, en su forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye picos a  $3,57 \pm 0,07$  y  $3,42 \pm 0,07$  Angstroms.

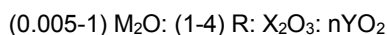
En otros aspectos, el tamiz molecular comprende además, en su forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye un pico de  $6,9 \pm 0,15$ .

En otros aspectos, el tamiz molecular tiene una composición que implica la relación molar:



en donde X es un elemento trivalente que comprende al menos uno de aluminio, boro, hierro y galio,

Y es un elemento tetravalente que comprende al menos uno de silicio y germanio, y n es al menos 10. En la forma sintetizada, el tamiz molecular tiene una fórmula, de forma anhidra y en términos de moles de óxidos por n moles de  $YO_2$ , como sigue:



en donde M es un metal alcalino o alcalinotérreo, y R es una plantilla orgánica. En una realización preferida, n va de 10 a 150, más preferiblemente de 30 a 60. En algunas realizaciones preferidas, X es aluminio e Y es silicio.

En algunas realizaciones, el tamiz molecular calcinado tiene una capacidad de adsorción de colidina de al menos 150  $\mu\text{moles/g}$ , preferiblemente de al menos 250  $\mu\text{moles/g}$ .

Estas y otras facetas de la presente invención se harán evidentes a partir de la siguiente descripción detallada, figuras y reivindicaciones adjuntas.

## 5 Breve descripción de la figura

La Figura 1 muestra el patrón de DRX entre 5 a 11 grados  $2\theta$  del Ejemplo 1.

### Descripción detallada

#### Introducción

10 Cuando se enumeran los límites inferiores numéricos y los límites superiores numéricos, se contemplan los intervalos desde cualquier límite inferior hasta cualquier límite superior. Si bien las realizaciones ilustrativas de la descripción se han descrito con particularidad, se entenderá que otras modificaciones varias serán evidentes y se pueden realizar fácilmente por los expertos en la técnica sin apartarse del alcance de la divulgación. Por consiguiente, no se pretende que el alcance de las reivindicaciones adjuntas se limite a los ejemplos y descripciones que se exponen en la presente descripción, sino que se considere que las reivindicaciones abarcan todas las características de la novedad patentable  
15 que residen en la presente descripción, incluidas todas las características que serían tratados como equivalentes de los mismos por los expertos en la materia a los que se refiere la divulgación.

Tal como se usa en esta memoria descriptiva, el término "tipo de estructura" se usa en el sentido descrito en " Atlas of Zeolite Framework Types ", 2001.

20 Como se usa en el presente texto, el esquema de numeración para los grupos de tablas periódicas se usa como en Chemical and Engineering News, 63 (5), 27 (1985).

#### Patrón de difracción de rayos X en polvo

25 Las distancias interplanares,  $d$ , se calcularon en unidades Angstrom ( $\text{\AA}$ ), y las intensidades relativas de las líneas,  $I/I_0$ , donde la intensidad de la línea más fuerte sobre el fondo,  $I_0$ , se cuenta como 100, se derivaron con el uso de una rutina de ajuste de perfil (o algoritmo de segunda derivada). Las intensidades están sin corregir por los efectos de Lorentz y polarización. Las intensidades relativas se dan en términos de los símbolos VS = muy fuerte (mayor que 60 a 100), S = fuerte (mayor que 40 a 60), M = medio (mayor que 20 a 40) y W = débil (0 a 20). Debe entenderse que los datos de difracción listados como líneas simples pueden consistir en múltiples líneas superpuestas que, en ciertas condiciones, como las diferencias en los cambios cristalográficos, pueden aparecer como líneas resueltas o  
30 parcialmente resueltas. Normalmente, los cambios cristalográficos pueden incluir cambios menores en los parámetros de las celdas unitarias y/o un cambio en la simetría del cristal, sin un cambio en la estructura. Estos efectos menores, incluidos los cambios en las intensidades relativas, también pueden ocurrir como resultado de las diferencias en el contenido de cationes, la composición de la estructura, la naturaleza y el grado de llenado de los poros, y la historia térmica y/o hidrotérmica. Otros cambios en los patrones de difracción pueden ser indicativos de importantes diferencias entre los materiales, como es el caso de la comparación de MCM-22 con materiales similares, por ejemplo, MCM-49,  
35 MCM-56 y PSH-3.

Las distancias interplanares,  $d$ , se consideraban anchas si exhibían un ancho de pico de aproximadamente  $1,5^\circ$  o más a media altura determinado como un valor de intensidad del 50% desde el pico máximo hasta la línea de base.

El término "pico distinguible de DRX" como se usa en el presente documento se define como un pico de DRX con un pico máximo claramente definido, que es al menos dos veces el nivel de ruido de fondo promedio.

40 El término picos "no discretos" (también picos "no resueltos") en DRX como se usa en el presente documento significa picos que tienen un perfil monótono entre ellos (puntos sucesivos que aumentan constantemente (o permanecen uniformes) o disminuyen (o permanecen uniformes) dentro del ruido ).

El término picos "discretos" (también picos "resueltos") en DRX como se usa en el presente documento significa picos de DRX que no son no discretos (no resueltos).

45 La Figura 1 muestra gráficamente el patrón DRX entre 5 a 11 grados  $2\theta$  del producto del Ejemplo 1. La intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo entre los máximos de distancia interplanar  $d$  en el intervalo de 10,14 a 12,0 Angstroms y en el intervalo de 8,66 a 10,13 Angstroms, representados como B, es la distancia entre el punto más bajo (punto a) y el punto (punto b) en la línea de la línea de corrección de fondo en la misma distancia interplanar  $d$  DRX del punto más bajo (punto a) . La distancia entre el punto b y el punto (punto c) en la línea que  
50 conecta los máximos de distancia interplanar  $d$  en el intervalo de 10,14 a 12,0 Angstroms y en el intervalo de 8,66 a 10,13 Angstroms en la misma distancia interplanar de DRX  $d$  del punto más bajo es representado como A.

Materia de composición del EMM-13

A continuación, el tamiz molecular utilizado en el procedimiento de la presente invención se denomina EMM-13. EMM-13 es un nuevo material de la familia MCM-22 con un patrón de DRX sin precedentes que indica una estructura expandida y un mayor acceso a la región de la capa intermedia. Por lo general, muestra una combinación distintiva única de aspecto de DRX en la forma calcinada que comprende picos que tienen un máximo de distancia interplanar  $d$  en el intervalo de 14,17 a 12,57 Angstroms ( $\sim 6,15$ - $7,05$  grados  $2-\theta$ ), un máximo de distancia interplanar  $d$  en el intervalo de 12,1 a 12,56 Angstroms ( $\sim 7,3$ - $7,05$  deg  $2-$ ), un máximo de distancia interplanar  $d$  en el intervalo de 10,14 a 12,0 Angstroms ( $8,7$ - $7,35$  deg  $2-\theta$ ), y un máximo de distancia interplanar  $d$  en el intervalo de 8,66 a 10,13 Angstroms ( $10,2$ - $8,7$  grados  $2-\theta$ ); en donde dichos picos tienen un máximo de distancia interplanar  $d$  en el intervalo de 10,14 a 12,0 Angstroms ( $8,7$ - $7,35$  grados  $2-\theta$ ) y un máximo de distancia interplanar  $d$  en el intervalo de 8,66 a 10,13 Angstroms ( $10,2$ - $8,7$  grados  $2-\theta$ ) exhiben un valle en el medio, en donde la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo de dicho valle es menos del 50% del punto de intensidad en el mismo distancia interplanar  $d$  de DRX en la línea que conecta dichos picos que tienen un máximo distancia interplanar  $d$  en el intervalo de 10,14 a 12,0 Angstroms ( $8,7$ - $7,35$  grados  $2-\theta$ ) y en el intervalo de 8,66 a 10,13 Angstroms ( $10,2$ - $8,7$  grados  $2-\theta$ ); en donde dicho tamiz molecular EMM-13 tiene menos de 1,6% en peso de Ti.

La materia de composición de EMM-13 tiene, en forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye picos en los máximos de distancia interplanar  $d$  en  $13,18 \pm 0,25$ ,  $12,33 \pm 0,23$ , y muestra un valle entre los picos en  $11,05 \pm 0,2$  y  $9,31 \pm 0,2$  Angstroms con la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo que sea menos del 50% del punto en la misma distancia interplanar  $d$  de DRX en la línea que conecta el máximo de distancia interplanar  $d$  en alrededor de  $11,05 \pm 0,2$  y  $9,31 \pm 0,2$  Angstroms. En algunas realizaciones, dicho tamiz molecular EMM-13 tiene menos de 1,6% en peso de Ti.

En realizaciones adicionales, la materia de la composición de EMM-13 tiene además, en forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye picos en los  $d$ -espacios máximos a  $3,57 \pm 0,07$  y  $3,42 \pm 0,07$  Angstroms. En otras realizaciones adicionales, la materia de la composición de EMM-13 tiene además, en forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye un pico en el máximo de distancia interplanar  $d$  a  $6,9 \pm 0,15$  Angstroms. En otras realizaciones adicionales, la materia de la composición de EMM-13 tiene además, en forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye un pico en el máximo de distancia interplanar  $d$  a  $3,96 \pm 0,08$  Angstroms.

La materia de composición de EMM-13 tiene, en forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye picos en los máximos de distancia interplanar  $d$  e intensidades relativas a  $13,18 \pm 0,25$  (M-VS),  $12,33 \pm 0,23$  (M-VS), y muestra un valle entre los picos a  $11,05 \pm 0,2$  (WS) y  $9,31 \pm 0,2$  (WS) Angstroms pero con la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo que es menos del 50% del punto en la misma distancia interplanar  $d$  de DRX en la línea que conecta los máximos de distancia interplanar  $d$  en alrededor de  $11,05 \pm 0,2$  y  $9,31 \pm 0,2$  Angstroms.

Tabla 2

Distancia interplanar $d$ (Å)	Intensidad relativa, $I/I_0 \times 100$
14,17 > $d$ > 12,57	M-VS
12,56 > $d$ > 12,1	M-VS
12,0 > $d$ > 10,14	W-S
10,13 > $d$ > 8,66	W-S
$6,9 \pm 0,15$	W-M, amplio
$3,96 \pm 0,08$	W-VS, amplio
$3,57 \pm 0,06$	W-M
$3,43 \pm 0,06$	M-VS

En otras realizaciones, la composición de materia de EMM-13 tiene además, en forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye picos en los máximos de distancia interplanar  $d$  a  $3,57 \pm 0,07$  (WM) y  $3,42 \pm 0,07$  (M-VS) Angstroms. En otras realizaciones adicionales, la materia de composición de EMM-13 tiene además, en forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye un pico en el máximo de distancia interplanar  $d$  a  $6,9 \pm 0,15$  Angstroms (W-M, amplio). En otras realizaciones adicionales, la composición de materia de EMM-13 tiene, además, en forma sintetizada y en forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye un pico en el máximo de distancia interplanar  $d$  a  $3,96 \pm 0,08$  Angstroms (W-VS, amplio).

En algunas realizaciones preferidas, el patrón de difracción de rayos X del tamiz molecular cristalino EMM-13 tiene además picos en los máximos de distancia interplanar  $d$  e intensidades enumeradas en la Tabla 2.



En algunas realizaciones, el patrón de difracción de rayos X del tamiz molecular cristalino de esta descripción incluye además un máximo de distancia interplanar  $d$  en  $28 \pm 1$  Angstroms.

La composición de materia de EMM-13 se define por su estructura cristalina. La estructura cristalina de EMM-13 se define por su celda unitaria, que es la unidad estructural más pequeña que contiene todos los elementos estructurales del material. La celda unitaria de EMM-13 tiene un grupo espacial  $P6/mmm$  y coordenadas atómicas de átomos tetraédricos (T) y átomos de oxígeno enumerados en la Tabla 3 y con dimensiones de celda unitaria de  $a = 14,198$  (2) y  $c = 27,647$  (7) Å, en donde dicho tamiz molecular EMM-13 puede tener menos de 1,6% en peso de Ti. Como los átomos tetraédricos pueden moverse debido a otras fuerzas cristalinas (por ejemplo, la presencia de especies orgánicas o inorgánicas), se implica un intervalo de  $\pm 0,05$  nm para cada posición de coordenada.

5

10

Tabla 3

Átomo	x/a	y/b	z/c	Uiso	occ.
T1	0,6667	0,3333	0,1126(2)	0,00649	1,0
T2	0,4652(5)	0,2326(3)	0,1754(3)		
T3	0,3901(5)	0,0	0,1897(4)		
T4	0,6667	0,3333	0,2403(4)		
T5	0,6667	0,3333	0,3575(4)		
T6	0,3894(5)	0,0	0,3050(4)		
T7	0,4215(5)	0,2108(2)	0,3593(3)		
T8	0,2502(5)	0,1251(3)	0,4450(2)		
T9	0,6667	0,3333	0,0		
O10	0,6667	0,3333	0,0562(1)	0,010	1,0
O11	0,5420(3)	0,2710(1)	0,1282(2)		
O12	0,3876(5)	0,1037(2)	0,1681(4)		
O13	0,5408(3)	0,2704(2)	0,2230(3)		
O14	0,6667	0,3333	0,2991(4)		
O15	0,3725(2)	0,0	0,2473(3)		
O16	0,5	0,0	0,176(1)		
O17	0,5	0,0	0,318(1)		
O18	0,3951(6)	0,1062(3)	0,3279(3)		
O19	0,5453(3)	0,2727(1)	0,3786(4)		
O20	0,3519(7)	0,1759(4)	0,4087(3)		
O21	0,1806(5)	0,0	0,4320(3)		
O22	0,2928(8)	0,1464(4)	0,5		
Estructura extra					
T23	0,4499	0,1812	0,0686	0,025	0,355
T24	0,2477	0,1232	0,0360	0,025	0,160
Aproximado					
O25	0,663	0,452	0,0	0,025	0,099

En la Tabla 3,  $x/a$ ,  $y/b$ ,  $z/c$  son las coordenadas fraccionales de los átomos en la celda unitaria referidos a los ejes de la celda unitaria  $a = b$ ,  $c$ . Uiso es el factor de temperatura isotrópico para cada átomo en Å<sup>2</sup>. La cantidad 'occ' es el factor de ocupación para cada átomo, es decir, si es menor que 1,0, hay una distribución estadística de átomos o vacantes en cada sitio en el cristal.

15

En algunas realizaciones, el EMM-13 calcinado exhibe un extraordinario número alto de colidina mayor que 150  $\mu\text{moles/g}$ , preferiblemente mayor que 200  $\mu\text{moles/g}$ , más preferiblemente mayor que 250  $\mu\text{moles/g}$ , aún más

preferiblemente mayor que 300  $\mu\text{moles/g}$ , y lo más preferiblemente mayor que 350  $\mu\text{moles/g}$ , en comparación con aproximadamente 120-200  $\mu\text{moles/g}$  para EMM-10 y 120  $\mu\text{moles/g}$  para MCM-22. No se pretende limitarse por ninguna teoría, se cree que el EMM-13 calcinado tiene un parámetro de celda c-unidad fijado en la forma expandida como el precursor cuando se calcina.

5 Composición química de EMM-13 sintetizado y EMM-13 calcinado

El material de tamiz molecular EMM-13 sintetizado según esta descripción puede prepararse a partir de un precursor de MCM-22-P, que se puede obtener a partir de una mezcla de reacción para reacción hidrotérmica que contiene fuentes de metal alcalino o alcalinotérreo (M), por ejemplo, sodio o potasio, catión, un óxido del elemento trivalente X, por ejemplo, aluminio, un óxido del elemento tetravalente Y, por ejemplo, silicio, un agente director orgánico (R), a continuación más particularmente descrito, y agua, la mezcla de reacción para reacción hidrotérmica. Teniendo una composición, en términos de relaciones molares de óxidos:

$Y\text{O}_2/X_2\text{O}_3$  en el intervalo de 10 a infinito o en el intervalo de 10 a 50;

$M/X_2\text{O}_3$  en el intervalo de 0,005-5,0; y

$R/X_2\text{O}_3$  en el intervalo de 0,01-10.

15 El material de tamiz molecular EMM-13 calcinado de esta descripción se puede preparar calcinando EMM-13 sintetizado en condiciones de calcinación para eliminar al menos la mayoría de la plantilla orgánica R de EMM-13 sintetizado.

El material de tamiz molecular EMM-13 sintetizado o calcinado tiene menos de 1,6% en peso de titanio, preferiblemente menos de 1% en peso, más preferiblemente menos de 0,5% en peso, y lo más preferiblemente menos de 0,1% en peso de titanio.

Procedimiento de elaboración del EMM-13.

El tamiz molecular cristalino sintetizado como EMM-13 se puede preparar por el método que comprende las etapas de:

25 (a) proporcionar una mezcla que comprende MCM-22-P y composición ácida, opcionalmente un agente espaciador; y

(b) tratar la mezcla en condiciones de tratamiento para formar un producto que comprende EMM-13 sintetizado; y

(c) recuperar el tamiz molecular cristalino tratado con ácido.

El EMM-13 sintetizado de forma adicional se puede realizar mediante un procedimiento que comprende:

30 (1) proporcionar una mezcla que comprende MCM-22-P que tiene  $\text{Si}/\text{Al}_2$  en el intervalo de 10-infinito, preferiblemente de aproximadamente 10 a 150, y composición ácida que comprende al menos uno de ácido nítrico, ácido sulfúrico, ácido clorhídrico; ácido oxálico, en donde dicho ácido tiene una concentración menor o igual a 10 N, preferiblemente menor que 1 N, opcionalmente un agente espaciador que comprende al menos uno de dimetildietoxi silano, dietildietoxi silano y tetraetil silano (TEOS), preferiblemente TEOS; y

35 (2) tratar la mezcla de la etapa (1) en las condiciones de tratamiento, en donde las condiciones de tratamiento comprenden una temperatura en el intervalo de 50-250°C durante un tiempo en el intervalo de 1-24 h, opcionalmente con una velocidad de agitación en el intervalo de 0 -1000 RPM.

La mezcla de la etapa (a) comprende MCM-22-P, composición ácida y, opcionalmente un agente espaciador, en donde la relación de peso del contenido sólido de MCM-22-P sobre la composición ácida y la relación de peso del agente espaciador sobre el contenido de sólidos del MCM-22-P se enumeran en la Tabla 4. Las condiciones de tratamiento de la etapa (b) incluyen la temperatura del tratamiento, el tiempo de tratamiento. Los intervalos útiles y preferidos de la temperatura de tratamiento y el tiempo de tratamiento se enumeran en la Tabla 4.

Tabla 4

	Intervalo útil	Intervalo preferido	Intervalo lo más preferido
Contenido sólido (peso)	0,001-1000	0,01-100	0,1-10
Composición ácida			
Agente espaciador (peso)	0-2	0-1	0,01-0,5
Contenido sólido (peso)			

## ES 2 699 702 T3

	Intervalo útil	Intervalo preferido	Intervalo lo más preferido
Concentración de ácido (N)	0,001-10	0,001-5	0,01-2
Temperatura (°C)	25-250	50-200	90-170
Tiempo (h)	0,01-240	1-48	1-24

5 Las siguientes relaciones en peso de sólidos en composición ácida son límites inferiores útiles: 0,001, 0,01, 0,05, 0,1, 0,5, 1, 5, 10, 50, 100 y 500. Las siguientes relaciones en peso de sólidos en composición ácida son límites superiores útiles: 0,01, 0,05, 0,1, 0,5, 1, 5, 10, 50, 100, 500 y 1000. La relación de peso de sólidos en composición ácida se encuentra en un intervalo entre cualquiera de los límites inferiores mencionados anteriormente y cualquiera de los límites superiores mencionados anteriormente, siempre que el límite inferior sea inferior o igual al límite superior. La relación de peso de sólidos en composición ácida puede estar presente en una cantidad que varía de 0,01 a 100 en una realización, alternativamente de 0,1 a 10, alternativamente de 0,1 a 5.

10 Las siguientes relaciones son agentes de separación inferior útiles sobre los límites de relación de peso de contenido sólido: 0, 0,001, 0,01, 0,05, 0,1, 0,5, 1 y 1,5. Las siguientes relaciones son agentes espaciadores superiores útiles sobre límites de relación ponderal de contenido sólido: 0,001, 0,01, 0,05, 0,1, 0,5, 1, 1,5 y 2. La relación de peso de agentes de separación sobre contenido sólido se encuentra en un intervalo entre cualquiera de los agentes de separación inferior sobre contenido sólido mencionados anteriormente y cualquiera de los agentes de separación superior sobre contenido sólido mencionados anteriormente, siempre que la relación de peso límite del agente de separación inferior sobre contenido sólido sea menor o igual a la relación de peso límite del agente de separación superior sobre contenido sólido. El espaciado sobre la relación de peso de contenido sólido puede estar presente en una cantidad que varía de 0 a 2 en una realización, alternativamente 0 a 1, y alternativamente 0,1 a 0,5.

20 Las siguientes temperaturas (°C) son límites de temperatura útiles de tratamiento más bajos: 25, 50, 60, 70, 80, 90, 100, 110, 120, 130, 140, 150, 160, 170 y 200. Las siguientes temperaturas (°C) son límites de temperatura útiles de tratamiento superior: 50, 60, 70, 80, 90, 100, 110, 120, 130, 140, 150, 160, 170, 180, 190, 200, 210, 220, 230, 240, y 250. La temperatura de tratamiento (°C) se encuentra en un intervalo entre cualquiera de los límites de temperatura de tratamiento más bajos mencionados anteriormente y cualquiera de los límites de temperatura de tratamiento superiores mencionados anteriormente, siempre que el límite de temperatura de tratamiento más bajo sea menor que o igual al límite superior de temperatura de tratamiento. La temperatura de tratamiento puede estar presente en una cantidad que varía de 25 °C a 250 °C en una realización, alternativamente de 70 °C a 200 °C, y alternativamente de 90 °C a 170 °C.

30 Los siguientes tiempos (h) son límites de tiempo más bajos útiles para el tratamiento: 0,01, 1, 5, 10, 20, 30, 50, 100 y 150. Los siguientes tiempos (h) son límites de tiempo superiores útiles para el tratamiento: 1, 5, 10, 20, 40, 50, 70, 100, 150, 200 y 240. El tiempo (h) para el tratamiento se encuentra en un intervalo entre cualquiera de los límites de tiempo más bajos mencionados anteriormente para el tratamiento y cualquiera de los límites de tiempo superiores mencionados anteriormente para el tratamiento, siempre que el límite de tiempo inferior para el tratamiento sea menor o igual que el límite de tiempo superior para el tratamiento. El tiempo para el tratamiento puede estar presente en una cantidad que varía de 1 a 100 en una realización, alternativamente de 1 a 48, y alternativamente de 1 a 24.

(1) MCM-22-P

35 El producto MCM-22-P se describe en el documento de Patente de EE.UU. núm. 4.954.325.

El MCM-22-P según lo descrito en el documento de Patente de EE.UU. núm. 4.954.325, se puede hacer por cristalización de una mezcla que tiene una composición en la relación molar enumerada en la Tabla 5.

Tabla 5

Reactivos	Útil	Preferido
YO <sub>2</sub> /X <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10 hasta el infinito	15-55
H <sub>2</sub> O/YO <sub>2</sub>	1 a 10000	5-35
OH/YO <sub>2</sub> *	0,001-0,39	0,1-0,35
OH/YO <sub>2</sub> **	0,001-0,59	0,1-0,5
M/YO <sub>2</sub>	0,001-2	0,1-1
R/YO <sub>2</sub>	0,001-2	0,01-0,5
Semilla***	0-25% en peso	1-5% en peso
R	HMI	HMI

Después de la cristalización, el producto MCM-22-P tiene una composición en la relación molar que se indica en la Tabla 6.

Tabla 6

Reactivos	Útil	Preferido
$YO_2/X_2O_3$	10 hasta el infinito	10-150
$M/X_2O_3$	0,005-0,1	
$R/X_2O_3$	1-4	
R	HMI	

5

### (2) Composición ácida

La composición ácida útil para esta descripción comprende un soluto ácido y un disolvente. El soluto ácido comprende al menos uno entre ácido inorgánico, como ácido nítrico, ácido clorhídrico y ácido sulfúrico, y ácido orgánico, como ácido oxálico y ácido acético, o cualquier combinación de ácido inorgánico y ácido orgánico. Preferiblemente, el soluto ácido es ácido nítrico. El disolvente comprende al menos uno de agua, metanol, etanol, acetona y dimetilsulfóxido (DMSO).

10

15

La concentración de ácido de la composición ácida está en el intervalo de 0,001 a 10. Las siguientes concentraciones de ácido son límites inferiores útiles: 0,001, 0,01, 0,05, 0,1, 0,5, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8 y 9. Las siguientes concentraciones de ácido son límites superiores útiles: 0,01, 0,05, 0,1, 0,5, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 y 10. La concentración de ácido se encuentra en un intervalo entre cualquiera de los límites inferiores mencionados anteriormente y cualquiera de los límites superiores mencionados anteriormente, siempre que el límite inferior sea inferior o igual al límite superior. La concentración de ácido puede estar presente en una cantidad que varía de 0,001 a 5 en una realización, alternativamente de 0,01 a 4, y alternativamente de 0,1 a 2.

20

El peso de la composición ácida como se usa en el contenido de sólidos con respecto a las proporciones en peso de la composición ácida se calcula en base al peso total de soluto ácido y disolvente.

### (3) Agente espaciador

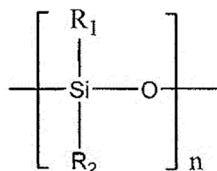
Opcionalmente, la etapa de tratamiento ácido también comprende un agente espaciador. El agente espaciador útil es cualquier agente capaz de proporcionar un resto que pueda estabilizar el precursor en forma expandida (es decir, que tiene el pico distinto (002) a  $13,5 \pm 0,25$  en formas tanto sintetizadas como calcinadas). Por ejemplo, el agente espaciador puede ser un agente de sililación que es capaz de proporcionar un resto de silicio que puede estabilizar el precursor en forma expandida.

25

30

Ejemplos de compuestos para el espaciado incluyen compuestos orgánicos de un elemento tetravalente, un elemento trivalente y/o compuestos pentavalentes, tales como, compuesto de organosilicio, compuesto de organogermanio, compuestos de organotitanio, compuestos de organoboro, compuesto de organoaluminio y compuesto organofósforo. Los compuestos de silicio organosilícico pueden comprender un polisiloxano que incluye siliconas, un siloxano y un silano que incluye disilanos y alcoxisilanos.

Los compuestos de silicona que se pueden usar en la presente invención incluyen los siguientes:



35

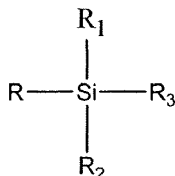
en donde  $R_1$  es hidrógeno, flúor, hidroxilo, alquilo, aralquilo, alcarilo o fluoroalquilo. Los sustituyentes hidrocarbonados generalmente contienen de 1 a 10 átomos de carbono y preferiblemente son grupos metilo o etilo.  $R_2$  se selecciona del mismo grupo que  $R_1$ , y  $n$  es un número entero de al menos 2 y generalmente en el intervalo de 2 a 1000. El peso molecular del compuesto de silicona empleado está generalmente entre 80 a 20 000 y preferiblemente 150 a 10 000. Los compuestos de silicona representativos incluyen dimetilsilicona, dietilsilicona, fenilmetilsilicona, metilhidrogensilicona, etilhidrogensilicona, fenilhidrogensilicona, fluoropropilsilicona, etiltrifluoropropilsilicona, tetraclorofenil metil metiletilsilicona, feniletilsilicona, difenilsilicona, metiltrisilicona, tetraclorofeniletilsilicona, metilvinilsilicona y etilvinilsilicona. El compuesto de silicona no tiene que ser lineal sino que puede ser cíclico como por ejemplo hexametilciclotrisiloxano, octametilciclotetrasiloxano, hexafenil ciclotrisiloxano y octafenilciclotetrasiloxano.

40

También se pueden usar mezclas de estos compuestos, así como siliconas con otros grupos funcionales.

Los siloxanos y polisiloxanos útiles incluyen, como ejemplo no limitante, hexametilciclotrisiloxano, octametilciclotetrasiloxano, decametilciclopentasiloxano, hexametildisiloxano, octametiltrisiloxano, decametiltetrasiloxano, hexaetilciclotrisiloxano, octaetilciclotetrasiloxano, hexaetilciclotetrasiloxano y octaetilciclotetrasiloxano.

Silanos, disilanos o alcoxisilanos útiles incluyen silanos orgánicos sustituidos que tienen la fórmula general:



en donde R es un grupo reactivo tal como hidrógeno, alcoxi, halógeno, carboxi, amino, acetamida, trialkilsiloxi, R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> y R<sub>3</sub> puede ser lo mismo que R o puede ser un radical orgánico que puede incluir alquilo de 1 a 40 átomos de carbono, ácido alquil o arilcarboxílico en donde la porción orgánica del alquilo contiene de 1 a 30 átomos de carbono y el grupo arilo contiene de 6 a 24 carbonos que pueden estar sustituidos adicionalmente, grupos alquilarilo y arilalquilo que contienen de 7 a 30 átomos de carbono. Preferiblemente, el grupo alquilo para un alquil silano tiene entre 1 y 4 átomos de carbono en longitud de cadena. También se pueden utilizar mezclas.

Los silanos o disilanos incluyen, como ejemplos no limitantes, dimetilfenilsilano, feniltrimetilsilano, trietilsilano y hexametildisilano. Los alcoxisilanos útiles son aquellos con al menos un enlace de silicio-hidrógeno.

Procedimiento de alquilación

El término "aromático" en referencia a los compuestos aromáticos alquilables que pueden ser útiles como materia prima en el presente documento debe entenderse de acuerdo con su alcance reconocido en la técnica. Esto incluye compuestos mono y polinucleares sustituidos con alquilo y sin sustituir. Los compuestos de un carácter aromático que poseen un heteroátomo también pueden ser útiles siempre que se mantenga una actividad catalítica suficiente en las condiciones de reacción seleccionadas.

Los compuestos aromáticos sustituidos que pueden alquilarse en el presente documento deben poseer al menos un átomo de hidrógeno unido directamente al núcleo aromático. Los anillos aromáticos pueden estar sustituidos con uno o más grupos alquilo, arilo, alcarilo, alcoxi, ariloxi, cicloalquilo, haluro y/u otros que no interfieran con la reacción de alquilación.

Los compuestos aromáticos adecuados incluyen benceno, naftaleno, antraceno, naftaceno, perileno, coroneno y fenantreno, siendo preferido el benceno.

En general, los grupos alquilo que pueden estar presentes como sustituyentes en el compuesto aromático contienen de 1 a 22 átomos de carbono y generalmente de 1 a 8 átomos de carbono, y lo más generalmente de 1 a 4 átomos de carbono.

Los compuestos aromáticos sustituidos con alquilo adecuados incluyen tolueno, xileno, isopropilbenceno, n-propilbenceno, alfa-metilnaftaleno, etilbenceno, mesitileno, dureno, cimenos, butilbenceno, pseudocumeno, o-dietilbenceno, m-dietilbenceno, p-dietilbenceno, isoamilbenceno, isohexilbenceno, pentaetilbenceno, pentametilbenceno; 1,2,3,4-tetraetilbenceno; 1,2,3,5-tetrametilbenceno; 1,2,4-trietilbenceno; 1,2,3-trimetilbenceno, m-butiltolueno; p-butiltolueno; 3,5-dietiltolueno; o-etiltolueno; p-etiltolueno; m-propiltolueno; 4-etil-m-xileno; dimetilnaftaleno; etilnaftaleno; 2,3-dimetilantreno; 9-etilantraceno; 2-metilantraceno; o-metilantraceno; 9,10-dimetilfenantreno; y 3-metil-fenantreno. Los compuestos alquilaromáticos de peso molecular más alto también pueden usarse como materiales de partida e incluyen compuestos orgánicos aromáticos, tales como los producidos por la alquilación de compuestos orgánicos aromáticos con oligómeros de olefinas. Dichos productos se denominan frecuentemente en la técnica como alquilatos e incluyen hexilbenceno, nonilbenceno, dodecilbenceno, pentadecilbenceno, hexiltolueno, noniltolueno, dodeciltolueno, pentadeciltolueno, etc. Muy a menudo se obtiene alquilato en una fracción en ebullición donde el grupo alquilo enlazado al núcleo aromático varía en tamaño desde C<sub>6</sub> a C<sub>12</sub>. Cuando cumeno o etilbenceno es el producto deseado, el procedimiento actual produce subproductos aceptablemente pequeños, tales como n-propilbenceno y xilenos respectivamente. Estos subproductos fabricados en tales casos pueden ser inferiores a aproximadamente 100 wppm.

El reformado que contiene una mezcla de benceno, tolueno y/o xileno constituye un alimento particularmente útil para el procedimiento de alquilación de esta descripción.

Los agentes alquilantes que pueden ser útiles en el procedimiento de esta descripción incluyen generalmente cualquier compuesto orgánico alifático o aromático que tiene uno o más grupos alifáticos alquilantes disponibles capaces de reaccionar con el compuesto aromático alquilable, preferiblemente con el grupo alquilante que posee de 1 a 5 átomos

de carbono. Ejemplos de agentes de alquilación adecuados son olefinas tales como etileno, propileno, los butenos tales como, por ejemplo, 1-buteno, 2-buteno o isobutileno, y los pentenos; alcoholes (incluidos monoalcoholes, dialcoholes, trialcoholes, etc.) tales como metanol, etanol, los propanoles, los butanoles y los pentanoles; aldehídos tales como formaldehído, acetaldehído, propionaldehído, butiraldehído y n-valeraldehído; y haluros de alquilo tales como cloruro de metilo, cloruro de etilo, cloruros de propilo, cloruros de butilo y cloruros de pentilo, y otros. Las mezclas de estos compuestos también pueden ser útiles, tales como, por ejemplo, mezclas de propileno y propanol.

Las mezclas de olefinas ligeras son útiles como agentes alquilantes en el procedimiento de alquilación de esta descripción. Por consiguiente, mezclas de etileno, propileno, butenos y/o pentenos que son constituyentes principales de una variedad de corrientes de refinería, por ejemplo, gas combustible, gas de escape de la planta de gas que contiene etileno, propileno, etc., gas de salida de craqueo de nafta que contiene olefinas ligeras, las corrientes de propano/propileno FCC de refinería, etc., son agentes alquilantes útiles. Por ejemplo, una corriente de olefina ligera FCC típica posee la siguiente composición:

	Peso %	Moles %
Etano	3,3	5,1
Etileno	0,7	1,2
Propano	4,5	15,3
Propileno	42,5	46,8
Isobutano	12,9	10,3
n-butano	3,3	2,6
Butenos	22,1	18,32
Pentanes	0,7	0,4

Los productos de reacción que se pueden obtener a partir del procedimiento de la presente descripción incluyen etilbenceno de la reacción de benceno con etileno, cumeno de la reacción de benceno con propileno, etiltolueno de la reacción de tolueno con etileno, cumenos de la reacción de tolueno con propileno, y sec-butilbenceno de la reacción de benceno y n-butenos. Los mecanismos de procedimiento particularmente preferidos de la descripción se refieren a la producción de cumeno por la alquilación de benceno con propileno y la producción de etilbenceno por la alquilación de benceno con etileno.

Los reactivos pueden estar parcial o completamente en la fase líquida y pueden estar limpios, es decir, sin mezcla o dilución intencional con otro material, o pueden ponerse en contacto con la composición del catalizador con la ayuda de gases portadores o diluyentes como, por ejemplo, hidrógeno, metano y/o nitrógeno.

El procedimiento de alquilación de esta descripción se puede llevar a cabo de modo que los reactivos orgánicos, es decir, el compuesto aromático alquilable y el agente alquilante, se pongan en contacto con el catalizador requerido en una zona de reacción adecuada en condiciones de alquilación efectivas. Tales condiciones incluyen una temperatura de aproximadamente 0 °C a aproximadamente 500 °C, preferiblemente de aproximadamente 10 °C a aproximadamente 260 °C, una presión de aproximadamente 20 a aproximadamente 25 000 kPa-a, preferiblemente de aproximadamente 100 a aproximadamente 5 500 kPa -a, una relación molar de compuesto aromático alquilable a agente alquilante de aproximadamente 0,1:1 a aproximadamente 50:1, preferiblemente de aproximadamente 0,5:1 a aproximadamente 10:1, y una velocidad espacial horaria másica de alimentación (WHSV, por sus siglas en inglés) basada en el agente alquilante de aproximadamente 0,1 a 500 h<sup>-1</sup>, preferiblemente de aproximadamente 0,1 a aproximadamente 100 h<sup>-1</sup>.

Cuando el benceno se alquila con etileno para producir etilbenceno, la reacción de alquilación se lleva a cabo preferiblemente en la fase líquida en condiciones que incluyen una temperatura de aproximadamente 150 °C a aproximadamente 300 °C, más preferiblemente de aproximadamente 170 °C a aproximadamente 260 °C; una presión de hasta aproximadamente 20 400 kPa-a, más preferiblemente de aproximadamente 2 000 kPa-a a aproximadamente 5 500 kPa-a; una velocidad espacial horaria másica (WHSV) basada en el agente alquilante de etileno de aproximadamente 0,1 a aproximadamente 20 h<sup>-1</sup>, más preferiblemente de aproximadamente 0,5 a aproximadamente 6 h<sup>-1</sup>; y una relación de benceno a etileno en la zona de reacción de alquilación de aproximadamente 0,5:1 a aproximadamente 100:1 molar, preferiblemente de 0,5:1 a 50:1 molar, más preferiblemente de aproximadamente 1:1 a aproximadamente 30:1 molar, lo más preferiblemente de aproximadamente 1:1 a aproximadamente 10:1 molar.

Cuando el benceno se alquila con propileno para producir cumeno, la reacción también puede tener lugar en condiciones de fase líquida que incluyen una temperatura de hasta aproximadamente 250 °C, preferiblemente hasta aproximadamente 150 °C, por ejemplo, de aproximadamente 10 °C a aproximadamente 125 °C; una presión de aproximadamente 25 000 kPa-a o menos, por ejemplo, de aproximadamente 100 a aproximadamente 3 000 kPa-a; una velocidad espacial horaria másica (WHSV) basada en un agente alquilante de propileno de aproximadamente 0,1

$h^{-1}$  a aproximadamente  $250 h^{-1}$ , preferiblemente desde aproximadamente  $1 h^{-1}$  a aproximadamente  $50 h^{-1}$ ; y una relación de benceno a propileno en la zona de reacción de alquilación de aproximadamente 0,5:1 a aproximadamente 100:1 molar, preferiblemente de 0,5:1 a 50:1 molar, más preferiblemente de aproximadamente 1:1 a aproximadamente 30:1 molar, lo más preferiblemente de aproximadamente 1:1 a aproximadamente 10:1 molar.

- 5 Cuando el benceno se alquila con un buteno para producir sec-butilbenceno, la reacción también puede tener lugar en condiciones de fase líquida que incluyen una temperatura de hasta aproximadamente  $250\text{ }^{\circ}\text{C}$ , preferiblemente hasta aproximadamente  $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ , por ejemplo, de aproximadamente  $10\text{ }^{\circ}\text{C}$  a alrededor de  $125\text{ }^{\circ}\text{C}$ ; una presión de aproximadamente 25000 kPa-a o menos, por ejemplo, de aproximadamente 1 a aproximadamente 3000 kPa-a; una velocidad espacial horaria másica (WHSV) basada en el agente alquilante de buteno de aproximadamente  $0,1 h^{-1}$  a
- 10 aproximadamente  $250 h^{-1}$ , preferiblemente desde aproximadamente  $1 h^{-1}$  a aproximadamente  $50 h^{-1}$ ; y una relación de benceno a buteno en la zona de reacción de alquilación de aproximadamente 0,5:1 a aproximadamente 100:1 molar, preferiblemente de 0,5:1 a 50:1 molar, más preferiblemente de aproximadamente 1:1 a aproximadamente 30:1 molar, lo más preferiblemente de aproximadamente 1:1 a aproximadamente 10:1 molar.

- 15 Un resumen de los tamices moleculares y/o zeolitas, en términos de producción, modificación y caracterización de los tamices moleculares, se describe en el libro "Tamices moleculares: Principios de Síntesis e Identificación"; (R. Szostak, Blackie Academic & Professional, Londres, 1998, Segunda Edición). Además de tamices moleculares, se han utilizado materiales amorfos, principalmente sílice, silicato de aluminio y óxido de aluminio, como adsorbentes y soportes catalíticos. Se han utilizado y se están utilizando varias técnicas de conformación conocidas desde hace
- 20 tiempo, como el secado por pulverización, el pilling, la granulación y la extrusión, para producir macroestructuras en forma de, por ejemplo, partículas esféricas, material extruido, pellets y tabletas de microporos y otros tipos de materiales porosos para uso en catálisis, adsorción e intercambio iónico. Un resumen de estas técnicas se describe en "Fabricación de catalizadores," A. B. Stiles y T. A. Koch, Marcel Dekker, Nueva York, 1995.

- 25 En la medida deseada, los cationes metálicos originales del material sintetizado pueden reemplazarse de acuerdo con técnicas bien conocidas en la técnica, al menos en parte, por intercambio iónico con otros cationes. Los cationes de reemplazo preferidos incluyen iones metálicos, iones de hidrógeno, precursores de hidrógeno, por ejemplo, amonio, iones y mezclas de los mismos. Cationes particularmente preferidos son aquellos que adaptan la actividad catalítica para ciertas reacciones de conversión de hidrocarburos. Estos incluyen hidrógeno, metales de tierras raras y metales de los Grupos 1-17, preferiblemente los Grupos 2-12 de la Tabla Periódica de los Elementos.

- 30 El tamiz molecular cristalino EMM-13 de esta descripción debe estar generalmente deshidratado, al menos parcialmente. Esto se puede hacer calentando a una temperatura en el intervalo de, por ejemplo,  $200\text{ }^{\circ}\text{C}$  a  $595\text{ }^{\circ}\text{C}$  en una atmósfera como aire o nitrógeno, y a presiones atmosféricas, subatmosféricas o superatmosféricas, por ejemplo, entre 30 minutos y 48 horas. El grado de deshidratación se mide por el porcentaje de pérdida de peso en relación con la pérdida de peso total de una muestra de tamiz molecular a  $595\text{ }^{\circ}\text{C}$  en atmósfera de nitrógeno seco (menos de 0,001 kPa de presión parcial de vapor de agua) durante 48 horas. La deshidratación también se puede realizar a temperatura
- 35 ambiente ( $\sim 25\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) simplemente colocando el silicato a vacío, pero se requiere un tiempo más largo para obtener una cantidad suficiente de deshidratación.

- El tamiz molecular cristalino EMM-13 de esta descripción especialmente en sus formas de metal, hidrógeno y amonio, se puede convertir de manera beneficiosa en otra forma mediante tratamiento térmico. Este tratamiento térmico generalmente se realiza calentando una de estas formas a una temperatura de al menos  $370\text{ }^{\circ}\text{C}$  durante al menos un minuto y generalmente no más de 1 000 horas. Mientras que la presión subatmosférica se puede emplear para el
- 40 tratamiento térmico, la presión atmosférica se requiere por razones de conveniencia. El tratamiento térmico se puede realizar a una temperatura de hasta aproximadamente  $925\text{ }^{\circ}\text{C}$ . El producto tratado térmicamente es particularmente útil en la catálisis de ciertas reacciones de conversión de hidrocarburos. El producto tratado térmicamente, especialmente en sus formas de metal, hidrógeno y amonio, es particularmente útil en la catálisis de ciertas reacciones
- 45 de conversión orgánicas, por ejemplo, de hidrocarburos. Ejemplos no limitantes de tales reacciones incluyen los descritos en los documentos de Patente de EE.UU. núm. 4.954.325; 4.973.784; 4.992.611; 4.956.514; 4.962.250; 4.982.033; 4.962.257; 4.962.256; 4.992.606; 4.954.663; 4.992.615; 4.983.276; 4.982.040; 4.962.239; 4.968.402; 5.000.839; 5.001.296; 4.986.894; 5.001.295; 5.001.283; 5.012.033; 5.019.670; 5.019.665; 5.019.664; y 5.013.422.

- 50 El tamiz molecular cristalino EMM-13 de esta descripción puede moldearse en una amplia variedad de tamaños de partículas. En términos generales, las partículas pueden estar en forma de un polvo, un gránulo o un producto moldeado, tal como un material extruido. En los casos en los que el catalizador se moldea, como por ejemplo por extrusión, los cristales pueden extruirse antes del secado o secarse parcialmente y luego extruirse.

- Se desea incorporar el tamiz molecular EMM-13 con otro material resistente a las temperaturas y otras condiciones empleadas en los procedimientos de alquilación. Tales materiales incluyen materiales activos e inactivos y zeolitas
- 55 sintéticas o naturales, así como materiales inorgánicos tales como arcillas, sílice y/u óxidos metálicos tales como alúmina. Los últimos pueden ser naturales o en forma de precipitados gelatinosos o geles que incluyen mezclas de sílice y óxidos metálicos. El uso de un material junto con el tamiz molecular EMM-13, es decir, combinado con el mismo o presente durante la síntesis del EMM-13, que está activo, tiende a cambiar la conversión y/o selectividad del catalizador. Los materiales inactivos sirven adecuadamente como diluyentes para controlar la cantidad de conversión
- 60 en un procedimiento dado para que los productos puedan obtenerse de manera económica y ordenada sin emplear

5 otros medios para controlar la velocidad de reacción. Estos materiales pueden incorporarse en arcillas naturales, por ejemplo, bentonita y caolín, para mejorar la resistencia al aplastamiento del catalizador en condiciones comerciales de operación. Los materiales, es decir, arcillas, óxidos, etc., funcionan como aglutinantes para el catalizador. Se requiere proporcionar un catalizador que tenga una buena resistencia al aplastamiento porque en uso comercial se requiere evitar que el catalizador se descomponga en materiales similares al polvo. Estos aglutinantes de arcilla se han empleado normalmente solo con el propósito de mejorar la resistencia al aplastamiento del catalizador.

10 Las arcillas naturales que se pueden componer con el tamiz molecular EMM-13 incluyen la familia de montmorillonita y caolín, cuyas familias incluyen las subbentonitas, y las caolinas comúnmente conocidas como arcillas Dixie, McNamee, Georgia y Florida u otras en las que el principal constituyente mineral es halloysita, caolinita, dickita, narcita o anauxita. Dichas arcillas se pueden usar en estado bruto tal como se extrajeron originalmente o se sometieron inicialmente a calcinación, tratamiento o modificación química. Los aglutinantes útiles para la composición con el presente cristal también incluyen óxidos inorgánicos, notablemente alúmina.

15 Además de los materiales anteriores, el tamiz molecular EMM-13 se puede componer con un material de matriz porosa tal como sílice-alúmina, sílice-magnesia, sílice-zirconio, sílice-torio, sílice-berilio, sílice-titanio así como composiciones ternarias tales como sílice-alúmina-torio, sílice-alúmina-zirconio sílice-alúmina-magnesia y sílice-magnesia-zirconio.

Las proporciones relativas del tamiz molecular cristalino EMM-13 finamente dividido y la matriz de óxido inorgánico varían ampliamente, con el contenido de cristales que varía de aproximadamente 1 a aproximadamente 99 por ciento en peso y más generalmente, particularmente cuando el compuesto se prepara en forma de perlas, en el intervalo de aproximadamente 20 a aproximadamente 80% en peso del compuesto.

20 Los siguientes ejemplos reflejan realizaciones de la invención y de ninguna manera pretenden limitar el alcance de la invención.

### Experimentos

#### Difracción de rayos X en polvo

25 Los datos de rayos X en polvo se obtuvieron en un instrumento Bruker D4 en geometría Bragg-Brentano con radiación Cu K $\alpha$  monocromática; el patrón utilizado para la caracterización estructural comprende de 1,2 a 80° en 2 $\theta$ . Las intensidades para el refinamiento de Rietveld se extrajeron de las exploraciones continuas. La indexación de los patrones de polvo se realizó con la herramienta en el programa JADE de MDI Inc.

30 La indexación de los patrones de polvo se realizó con la herramienta en el programa JADE de MDI Inc. Después de la construcción de un modelo de prueba (facilitado por el módulo de construcción de estructuras en Cerius<sup>2</sup> (Accelrys, Inc.)), su ajuste al perfil de difracción de polvo se realizó a través de los refinamientos de Rietveld con el programa GSAS como se describe en el documento A. C. Larsson y R. B. von Dreele, *General Structure Analysis System*, GSAS, Laboratorio Nacional de Los Álamos, Los Álamos, NM, 1994. A veces, la estructura se optimizaría geoméricamente con el programa DLS como se describe en Ch. Baerlocher, A. Hepp, y W. M. Meier, *Distance Least Squares Refinement Program*, DLS-76. ETH, Zúrich, 1977. Los mapas de densidad electrónica generados con GSAS podrían usarse para ubicar átomos adicionales en la celda unitaria, probados primero con modelos Cerius<sup>2</sup> para asegurar que no habría colisión con los átomos de la estructura. Se tuvo cuidado durante los refinamientos para evitar geometrías de unión inusuales. Para la estructura, ésto se aseguró parcialmente imponiendo una restricción a las distancias de enlace Si-O (1,61  $\pm$  0,03 Å) y las distancias tetraédricas O-O (2,65  $\pm$  0,06 Å). La función de ponderación para el refinamiento de la estructura se relajó gradualmente pero, después de cada paso de refinamiento, se determinó la razonabilidad química de la geometría de unión. Además de los parámetros de celda unitaria, fondo y desplazamiento cero, las funciones de perfil también se refinaron para mejorar el ajuste del modelo pero a veces se observó que los valores R habituales no denotaban necesariamente una coincidencia estrecha del modelo con la curva de intensidad experimental. En varios casos, se realizaron ajustes para la orientación preferida, esperados para los datos de Bragg-Brentano de un conjunto de cristal plateado de acuerdo con el documento R. A. Young, en: *The Rietveld Method* (R. A. Young, ed.). Oxford Univ. Press, Oxford, 1995, p. 11.

#### Áreas superficiales

50 El área superficial total de un tamiz molecular puede medirse mediante el método de Brunauer-Emmett-Teller (BET) utilizando la adsorción-desorción de nitrógeno (temperatura del nitrógeno líquido, -196 °C (77 K)). La superficie interna (ZSA, m<sup>2</sup>/g) puede calcularse utilizando t-plot de la medición de Brunauer-Emmett-Teller (BET). El área superficial externa (ZSA, m<sup>2</sup>/g) se calcula restando el área superficial interna del área superficial total medida por la medición de Brunauer-Emmett-Teller (BET). Volumen de microporos (M-poros en cm<sup>3</sup>/g) se determina por adsorción/desorción de nitrógeno (isoterma de nitrógeno).

#### Medición del número de colidina

55 El número de colidina de un tamiz molecular puede medirse por TGA. Una muestra se seca a 200 °C hasta peso constante (cambio de peso inferior a  $\pm$  1% durante el período de 1 hora). Luego se mide el peso de la muestra seca, el sorbato. El sorbente, 2,4,6-colidina, se administra mediante un rociador mantenido a 400 Pa (3 Torr) de presión



parcial de colidina y se transporta sobre la muestra mediante nitrógeno que pasa a 200 ml/min durante 60 min. El número de colidina se expresa como micromoles de adsorbido por gramo de sorbato.

#### Microscopía Electrónica y Difracción

- 5 Los experimentos de difracción de electrones del área seleccionada se llevaron a cabo a 300 kV con un microscopio electrónico FEI/Philips CM-30 utilizando un diámetro de área seleccionado de 0,25  $\mu\text{m}$ . En algunos casos, se hicieron inclinaciones tridimensionales alrededor de una red recíproca definida para trazar una red recíproca tridimensional. Se obtuvieron micrografías electrónicas de campo brillante a 32 240 x aumentos directos. La apertura de limitador de campo pasó la información de difracción a  $d^* = 0,08 \text{ \AA}^{-1}$ . Todas las exposiciones se registraron en la película Kodak Biomax MS.
- 10 Para la recopilación de datos de intensidad preliminar, las películas de difracción se digitalizaron en un escáner de superficie plana y, después de su indexación, las intensidades de los puntos individuales se calcularon con el programa ELD de acuerdo con el paquete X. D. Zou, Yu. Sukharev y S. Hovmöller, (*Ultramicroscopy* 53 (1994) 271 dentro del CRISP como se describe en S. Hovmöller, *Ultramicroscopy* 41 (1992) 121). Se promediaron las reflexiones relacionadas con la simetría y no se aplicó ninguna corrección de Lorentz a las magnitudes del factor de estructura derivada.
- 15 En algunos casos fue difícil obtener una integración de picos adecuada con ELD. En este caso, las películas fueron escaneadas en una cama plana Joyce Loebel Mk. El microdensitómetro III y las áreas de los picos utilizados como una estimación de sus intensidades. Para fusionar datos en un conjunto tridimensional, se usaron reflexiones comunes de zonas separadas para escalar un conjunto al otro como se explica en el documento D. L. Dorset, *Structural Electron Crystallography*. Plenum, Nueva York, 1995.
- 20 Para los estudios de difracción de electrones, se realizaron cálculos de factor de estructura con el programa Fortran SF y se obtuvieron distribuciones de potencial electrostático unidimensionales con el programa Fortran ZPOT después de que se proporcionaron aproximaciones de fase de una estructura conocida.

25 Las inclinaciones tridimensionales alrededor de ejes recíprocos de celdas unitarias definidas (generalmente  $a^*$ ) se representaron para proporcionar una vista sin distorsión de la red recíproca tridimensional. Utilizando el polvo estándar de oro habitual para la calibración, se podrían medir las dimensiones de la celda unitaria completa. De las ausencias sistemáticas en estos gráficos, la simetría de la celda unitaria también podría estimarse de acuerdo con El Hahn (ed.), *International Tables for Crystallography. Volumen A. Space-Group Symmetry*. Kluwer, Dordrecht, 1995.

- 30 Las estructuras se encontraron a partir de un conjunto de datos 3-D utilizando la máxima entropía y probabilidad con el programa MICE de acuerdo con C. J. Gilmore, K. Shankland, y G. Bricogne, *Proc. Roy Soc. Londres* 442 (1993) 97. Es útil utilizar un histograma de densidad de zeolita típico como se describe en Ch. Baerlocher, L. B. McCusker y L. Palatinus, *Z. Krist.* 222 (2007) 47 para discriminar aún más entre las soluciones estructurales de prueba seleccionadas por una cifra de mérito de máxima probabilidad según C. J. Gilmore, G. Bricogne y C. Bannister, *Acta Cryst.* A46 (1990) 297. En lugar de la permutación de la fase factorial completa de las reflexiones identificadas, un código de corrección de errores de Nordström-Robinson de acuerdo con C. J. Gilmore, W. Dong, y G. Bricogne, *Acta Cryst.* A55 (1999) 70 se utilizó para acelerar el cálculo.
- 35

#### Materiales y síntesis

Ejemplo 1: Síntesis de MCM-22-P con Si/Al<sub>2</sub> ~ 60

- 40 La mezcla de síntesis se preparó con 184 g de agua, 1,5 g de Usalco 45, 22 g de NaOH al 10%, 17 g de hexametilenoimina y 23 g de Ultrasil. Se hizo reaccionar a 150 °C con 100 RPM en una autoclave de 300 ml. La composición del producto y las características de la porosidad estructural se enumeran en la Tabla 7.

Ejemplo 2: Síntesis de MCM-22-P con Si/Al<sub>2</sub> ~ 23

La síntesis fue análoga al Ejemplo 1, el documento de Patente de EE.UU. 4.954.325. La composición del producto y las características de la porosidad estructural se enumeran en la Tabla 7.

- 45 Ejemplo 3a: Tratamiento ácido de MCM-22-P (Ejemplo 1) con silano para producir EMM-13 sintetizado y EMM-13 calcinado

50 Mezclar 30 gramos de una disolución 1 M de HNO<sub>3</sub> (obtenida mezclando 3 g de ácido concentrado con 27 g de agua) con 0,3 g de agente espaciador (agente de sililación) dimetildietoxi silano, y luego agregar 3 g de MCM-22-P de muestra sintetizada del Ejemplo 1. La mezcla se hizo reaccionar a 170 °C durante 24 h. El producto se filtró, se lavó con agua y se secó. El material tratado como se identificó por DRX como EMM-13 sintetizado. El material tratado se calcinó adicionalmente en aire a 540 °C durante 4 h. El material calcinado del ejemplo 3a se identificó mediante DRX como EMM-13 calcinado. La composición del producto y las características de la porosidad estructural se enumeran en la Tabla 7.

Ejemplo 3b: Tratamiento ácido de MCM-22-P (Ejemplo 1) para producir EMM-13 sintetizado y EMM-13 calcinado

Mezclar 30 gramos de una disolución 1 M de HNO<sub>3</sub> (obtenida mezclando 3 g de ácido concentrado con 27 g de agua),

y luego agregar 3 g de MCM-22-P de muestra sintetizada del Ejemplo 1. La mezcla se hizo reaccionar a 170 °C durante 24 h. El producto se filtró, se lavó con agua y se secó. El material tratado se identificó por DRX como EMM-13 sintetizado. El material tratado se calcinó adicionalmente en aire a 540 °C durante 4 h. El material calcinado del ejemplo 3b se identificó por DRX como EMM-13 calcinado. La composición del producto y las características de la porosidad estructural se enumeran en la Tabla 7.

5

Ejemplo 3c: Tratamiento ácido de MCM-22-P (Ejemplo 1) con sílice para producir EMM-13 sintetizado y EMM-13 calcinado

Mezclar 30 gramos de una disolución 1 M de HNO<sub>3</sub> (obtenida al mezclar 3 g de ácido concentrado con 27 g de agua) con 0,3 g de sílice pirógena (Cab-o-Sil), y luego agregar 3 g de MCM-22-P de una muestra sintetizada del Ejemplo 1. La mezcla se hizo reaccionar a 170 °C durante 24 h. El producto se filtró, se lavó con agua y se secó. El material tratado se identificó por DRX como EMM-13 sintetizado. El material tratado se calcinó adicionalmente en aire a 540 °C durante 4 h. El material calcinado del ejemplo 3c se identificó por DRX como EMM-13 calcinado. La composición del producto y las características de la porosidad estructural se enumeran en la Tabla 7.

10

Ejemplo 4a: Tratamiento ácido de MCM-22-P (Ejemplo 2) con silano para producir MCM-22-P y MCM-22

Mezclar 30 gramos de una disolución 1 M de HNO<sub>3</sub> (obtenida mezclando 3 g de ácido concentrado con 27 g de agua) con 0,3 g de agente espaciador (agente de sililación) dimetildietoxi silano, y luego agregar 3 g de MCM-22-P de muestra sintetizada del Ejemplo 2. La mezcla se hizo reaccionar a 170 °C durante 24 h. El producto se filtró, se lavó con agua y se secó. El material tratado se identificó por DRX como MCM-22-P. El material tratado se calcinó adicionalmente en aire a 540 °C durante 4 h. El material calcinado del ejemplo 4a se identificó por DRX como MCM-22. La composición del producto y las características de la porosidad estructural se enumeran en la Tabla 7.

15

20

Ejemplo 4b: Tratamiento ácido de MCM-22-P (Ejemplo 2) para producir MCM-22

Mezclar 30 gramos de una disolución 1 M de HNO<sub>3</sub> (obtenida al mezclar 3 g de ácido concentrado con 27 g de agua), y luego agregar 3 g de MCM-22-P de muestra sintetizada del Ejemplo 2. La mezcla se hizo reaccionar a 170 °C durante 24 h. El producto se filtró, se lavó con agua y se secó. El material tratado se identificó por DRX como MCM-22-P. El material tratado se calcinó adicionalmente en aire a 540 °C durante 4 h. El material calcinado del ejemplo 4b se identificó por DRX como MCM-22. La composición del producto y las características de la porosidad estructural se enumeran en la Tabla 7.

25

Tabla 7

Ejemplo	1	3a	3b	3c	2	4a	4b
Condiciones de síntesis							
Si/Al <sub>2</sub>	87				29,9		
Si+Al	8,7				13,9		
OH/Si	0,18				0,17		
R/Si	0,49				0,35		
T (°C)	150				150		
Tiempo (h)	76				60-70		
Condiciones de tratamiento ácido							
T (°C)		170	170	170		170	170
Tiempo (h)		24	24	24		24	24
Caracterización del producto y propiedades							
DRX	MCM-22-P + traza ZSM-12	EMM-13 sintetizado	EMM-13 sintetizado	EMM-13 sintetizado	MCM-22-P	MCM-22-P	MCM-22-P
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2,3	2,16	2,1				4,88
N/A	0,4	0,0339	0,267				0,0789
SiO <sub>2</sub>	78,9	85,3	78,7				76
Si/Al <sub>2</sub>	58,32	67,13	63,71				26,48
Caracterización del producto y propiedades después de la calcinación en aire a 540 ° C durante 4 horas							
DRX	MCM-22	EMM-13	EMM-13	EMM-13	MCM-22	MCM-22	MCM-22

Caracterización del producto y propiedades							
DRX	MCM-22-P + traza ZSM-12	EMM-13 sintetizado	EMM-13 sintetizado	EMM-13 sintetizado	MCM-22-P	MCM-22-P	MCM-22-P
BET	410	485	463	396		436	472
ZSA	378	456	404	327		329	362
MSA	32	29	58	68		107	110
M-poro	0,152	0,18	0,16	0,13		0,13	0,15
Collidine		214	153		124		

## Ejemplo 5: Síntesis de 40/1 MCM-22-P

La preparación se realizó como anteriormente pero con un gel que tiene la siguiente relación molar de reactivos: sílice/alúmina = 54/1, OH/Si = 0,15, agua/Si = 35, R/Si = 0,58. La mezcla se calentó a 170 °C durante 70 h y el producto se aisló mediante métodos estándar.

## Ejemplos 6-16: Síntesis EMM-13 con 40/1 MCM-22-P

Los ejemplos 6-16 se realizaron mezclando ácido concentrado con agua para formar una disolución ácida de acuerdo con la Tabla 8. Se agregaron varias cantidades de agente espaciador (agente de sililación) dimetildietoxi silano seguido de MCM-22-P de muestra sintetizada del Ejemplo 5 según la Tabla 8. Las mezclas se hicieron reaccionar en condiciones de tratamiento que incluyen una temperatura de tratamiento y el tiempo de acuerdo con la Tabla 8. Los productos se filtraron, se lavaron con agua y se secaron. La calcinación de los productos se llevó a cabo al aire a 540 °C durante 4 h. Los materiales tratados se calcinaron adicionalmente en aire a 540 °C durante 4 h. Los materiales calcinados del Ejemplo 6-11 y 13-16 se identificaron por DRX como EMM-13.

Tabla 8

Numero de ejemplo	Cantidad, gramos				Tiempo, horas	Temp., °C	Superficie, m <sup>2</sup> /sol			Collidine µmole/g
	Agua	HNO <sub>3</sub> conc.	40/1 Si/Al <sub>2</sub> MCM-22-P	Silano			Tortal BET	Zeolita zsa	Mesopore, MSA	
Matriz	40/1 Si/Al <sub>2</sub> MCM-22-P						521	478	43	44
6	9,5	0,5	0,4	0,02	24	170	568	485	83	350
7	7,25	2,75	1,7	0,21	17	145	600	540	60	244
8	9,5	0,5	3	0,02	10	170	615	544	71	262
9	5	5	0,4	0,02	10	120	642	573	69	195
10	5	5	0,4	0,4	10	170	492	462	30	134
11	9,5	0,5	3	0,4	10	120	623	565	58	327
12	5	5	3	0,02	24	120	556	480	76	89
13	9,5	0,5	0,4	0,4	24	120	533	499	34	266
14	5	5	3	0,4	24	170	675	609	66	311
15	7,25	2,75	1,7	0,21	17	145	609	547	62	245
16	8,62	1,38	3	0,5	17	90	642	588	55	212

## Pretratamiento de la alimentación

## Benceno

El benceno se obtuvo de una fuente comercial. El benceno se pasó a través de un recipiente de pretratamiento que contiene partes iguales (en volumen) de tamiz molecular 13X, tamiz molecular 4A, Engelhard F-24 Clay y Selexorb CD (en orden de entrada a salida), y luego a través de un recipiente de pretratamiento que contiene el catalizador MCM 22. Todos los materiales de pretratamiento de la alimentación se secaron en un horno a 260 °C durante 12 horas

antes de usar.

Propileno

El propileno se obtuvo de una fuente de gases de especialidad comercial y fue de calidad polimérica.

Etileno

- 5 El etileno se obtuvo de una fuente comercial de gases especiales y fue de calidad polimérica.

Nitrógeno

El nitrógeno fue de grado de pureza ultra alta y se obtuvo de una fuente comercial de gases especiales.

Ejemplo 17

- 10 Se prepararon tres 65% en peso de EMM-13 calcinado del Ejemplo 3a y 35% en peso de catalizador de alúmina. Estos tres catalizadores se probaron para determinar la alquilación de benceno con propileno para formar cumeno.

Secuencia de prueba para la fabricación de cumeno en una prueba de lecho fijo

- 15 El experimento se realizó en un reactor tubular de OD de 0,54 mm (3/8 ") de lecho fijo en una configuración de flujo descendente con un termopar interno de 3,18 mm (1/8"). El horno del reactor se controló en modo isotérmico. Se cargaron dos gramos de catalizador dimensionado a una malla 14/20 en el reactor de 0,54 mm (3/8 "). El lecho del catalizador se centró axialmente en la zona del horno central. El catalizador se empaquetó con arena inerte para llenar los espacios vacíos intersticiales. Las condiciones de reacción fueron 130 °C, 2 169 kPa y la relación molar de benceno/propileno fue de 3/1. La velocidad espacial horaria en peso fue de 1 h<sup>-1</sup> sobre una base de propileno.

- 20 En el arranque del reactor, el reactor se llevó a una presión de reacción de 2 169 kPa-a con el nitrógeno de pureza ultra alta y se calentó a una temperatura de reacción de 150 °C antes de introducir la alimentación de benceno durante 24 horas. Se dejó equilibrar el catalizador durante 1 día antes de introducir el propileno para lograr un estado estable antes de que se recogieran los datos. El reactor se enfrió a 130°C bajo un flujo de benceno y luego se introdujo propileno. Los productos fueron recolectados y analizados durante 13 días en línea. Los resultados muestran que las proporciones molares de diisopropilbenceno (DIPB) sobre cumeno (isopropilbenceno, IPB) de los productos están en el intervalo de 12% a 18%.

- 25 Ejemplo 18

Se usó 0,9 gramos de gránulo de 65% en peso de EMM-13 (Ejemplo 3a) y 35% en peso de alúmina Versal 300 (disponible comercialmente en UOP) para la alquilación de benceno con etileno para formar etilbenceno. El catalizador se calcinó durante 2 horas a 538 °C.

- 30 La alquilación del benceno con etileno se realizó cargando un peso fijo de catalizador en un reactor autoclave Parr bien mezclado junto con una mezcla que comprende benceno y etileno (relación benceno/etileno de 3,5 molar). La reacción se llevó a cabo a 220 °C y 3 893 KPa-a (550 psig) durante 4 horas. Se extrajo una pequeña muestra del producto a intervalos regulares y se analizó mediante cromatografía de gases. El rendimiento del catalizador se evaluó mediante una constante de velocidad de actividad cinética y una relación de peso de dietilbenceno/etilbenceno después de 4 horas. El catalizador EMM-13 tiene una actividad de 3 (h.gmole/cc)<sup>-1</sup> y una selectividad de 10,1 medida por la relación de peso de dietilbenceno/etilbenceno.
- 35

## REIVINDICACIONES

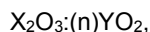
- 5 **1.** Un procedimiento para fabricar un compuesto monoalquil aromático, comprendiendo dicho procedimiento poner en contacto una materia prima que comprende un compuesto aromático alquilable y un agente alquilante en condiciones de reacción de alquilación con un catalizador que comprende un tamiz molecular que tiene una estructura de átomos tetraédricos unidos por átomos de oxígeno, estando definida la estructura del átomo tetraédrico por una celda unitaria con coordenadas atómicas en nanómetros que se muestra en la siguiente tabla:

Átomo	x/a	y/b	z/c	Uiso	occ.
T1	0,6667	0,3333	0,1126(2)	0,00649	1,0
T2	0,4652(5)	0,2326(3)	0,1754(3)		
T3	0,3901(5)	0,0	0,1897(4)		
T4	0,6667	0,3333	0,2403(4)		
T5	0,6667	0,3333	0,3575(4)		
T6	0,3894(5)	0,0	0,3050(4)		
T7	0,4215(5)	0,2108(2)	0,3593(3)		
T8	0,2502(5)	0,1251(3)	0,4450(2)		
T9	0,6667	0,3333	0,0		
O10	0,6667	0,3333	0,0562(1)	0,010	1,0
O11	0,5420(3)	0,2710(1)	0,1282(2)		
O12	0,3876(5)	0,1037(2)	0,1681(4)		
O13	0,5408(3)	0,2704(2)	0,2230(3)		
O14	0,6667	0,3333	0,2991(4)		
O15	0,3725(2)	0,0	0,2473(3)		
O16	0,5	0,0	0,176(1)		
O17	0,5	0,0	0,318(1)		
O18	0,3951(6)	0,1062(3)	0,3279(3)		
O19	0,5453(3)	0,2727(1)	0,3786(4)		
O20	0,3519(7)	0,1759(4)	0,4087(3)		
O21	0,1806(5)	0,0	0,4320(3)		
O22	0,2928(8)	0,1464(4)	0,5		
Estructura extra:					
T23	0,4499	0,1812	0,0686	0,025	0,355
T24	0,2477	0,1232	0,0360	0,025	0,160
Aproximado					
O25	0,663	0,452	0,0	0,025	0,099

- 10 en donde dicho tamiz molecular tiene además, en su forma sintetizada y en su forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye picos en los máximos de distancia interplanar  $d$  en  $13,18 \pm 0,25$ ,  $12,33 \pm 0,23$ ,  $11,05 \pm 0,2$  y  $9,31 \pm 0,2$  Angstroms, en donde dichos picos en los máximos de distancia interplanar  $d$  a  $11,05 \pm 0,2$  y  $9,31 \pm 0,2$  Angstroms exhiben un valle en el medio y la intensidad medida corregida para el fondo en el punto más bajo de dicho valle es menos del 50% del punto de intensidad en la misma distancia interplanar  $d$  del DRX en la línea que conecta los máximos de distancia interplanar  $d$  a  $11,05 \pm 0,2$  y  $9,31 \pm 0,2$  Angstroms.

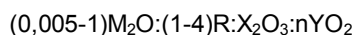
- 15 **2.** El procedimiento de la reivindicación 1, en donde dichas condiciones de reacción de alquilación incluyen una temperatura de  $0\text{ }^{\circ}\text{C}$  a  $500\text{ }^{\circ}\text{C}$ , una presión de 0,2 a 25 000 kPa-a, una relación molar de compuesto aromático alquilable a agente alquilante de 0,1:1 a 50:1, y una velocidad espacial horaria másica de alimentación (WHSV) basada en el agente alquilante de 0,1 a  $500\text{ h}^{-1}$ .

3. El procedimiento de la reivindicación 1 o 2, en donde dicho tamiz molecular tiene además una composición que implica la relación molar:



5 en donde X es un elemento trivalente que comprende al menos uno de aluminio, boro, hierro y galio, Y es un elemento tetravalente que comprende al menos uno de silicio y germanio, y n es al menos 30.

4. El procedimiento de la reivindicación 1, 2 o 3, en donde dicho tamiz molecular tiene además, en forma sintetizada, una fórmula, en una base anhidra y en términos de moles de óxidos por n moles de  $YO_2$ , como sigue:



donde M es un metal alcalino o alcalinotérreo, n es al menos 30 y R es una plantilla orgánica.

10 5. El procedimiento de una cualquiera de las reivindicaciones 3 a 4, en donde X es aluminio e Y es silicio.

6. El procedimiento de cualquier reivindicación precedente, que comprende menos de 1% en peso de Ti.

7. El procedimiento de la reivindicación 6, en donde dicho tamiz molecular tiene además, en su forma sintetizada y en su forma calcinada, un patrón de difracción de rayos X que incluye picos a  $6,9 \pm 0,15$ ,  $3,57 \pm 0,07$  y  $3,42 \pm 0,07$  Angstroms.

15 8. El procedimiento de cualquier reivindicación precedente, en donde dicho compuesto aromático alquilable se selecciona del grupo que consiste en benceno, naftaleno, antraceno, naftaceno, perileno, coroneno, fenantreno y mezclas de los mismos.

9. El procedimiento de cualquier reivindicación precedente, en donde dicho compuesto aromático alquilable comprende al menos uno de benceno y naftaleno.

20 10. El procedimiento de cualquier reivindicación precedente, en donde dicho agente alquilante se selecciona del grupo que consiste en olefinas, alcoholes, aldehídos, haluros de alquilo y mezclas de los mismos.

11. El procedimiento de cualquier reivindicación precedente, en donde dicho agente alquilante comprende al menos uno de etileno, propileno y butenos.

25 12. El procedimiento de la reivindicación 1 o una cualquiera de las reivindicaciones 3 a 7, en donde dicho compuesto aromático alquilable comprende benceno, dicho agente alquilante comprende etileno, dicho compuesto monoalquilaromático comprende etilbenceno, dichas condiciones de reacción de alquilación incluyen una temperatura de 150 °C a 300 °C, una presión de 2 000 a 5 500 kPa-a, una relación molar de compuesto aromático alquilable a agente alquilante de 0,5:1 a 50:1, y una velocidad espacial horaria másica de alimentación (WHSV) basada en el agente alquilante de 0,1 a 20  $h^{-1}$ .

30 13. El procedimiento de la reivindicación 1 o una cualquiera de las reivindicaciones 3 a 7, en donde dicho compuesto aromático alquilable comprende benceno, dicho agente alquilante comprende propileno, dicho compuesto monoalquilaromático comprende cumeno, dichas condiciones de reacción de alquilación incluyen una temperatura de 10 °C a 250 °C, una presión de 100 a 3 000 kPa-a, una relación molar de compuesto aromático alquilable a agente alquilante de 0,5:1 a 50:1, y una velocidad espacial horaria másica de alimentación (WHSV) basada en el agente alquilante de 0,1 a 250  $h^{-1}$ .

35 14. El procedimiento de la reivindicación 1 o una cualquiera de las reivindicaciones 3 a 7, en donde dicho compuesto aromático alquilable comprende benceno, dicho agente alquilante comprende butileno, dicho compuesto monoalquilaromático comprende sec-butilbenceno, dichas condiciones de reacción de alquilación incluyen una temperatura de 10 °C a 250 °C, una presión de 1 a 3 000 kPa-a, una relación molar de compuesto aromático alquilable a agente alquilante de 0,5:1 a 50:1, y una velocidad espacial horaria másica de alimentación (WHSV) basada en el agente de alquilación de 0,1 a 250  $h^{-1}$ .

