

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 704 982**

51 Int. Cl.:

**C07C 15/00** (2006.01)

**C07C 2/66** (2006.01)

**B01J 29/70** (2006.01)

**B01J 35/00** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **13.12.2012 PCT/US2012/069408**

87 Fecha y número de publicación internacional: **27.06.2013 WO13096075**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **13.12.2012 E 12858759 (9)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **10.10.2018 EP 2794525**

54 Título: **Transformación aromática usando zeolita de aluminosilicato UZM 39**

30 Prioridad:

**22.12.2011 US 201161578926 P**

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

**21.03.2019**

73 Titular/es:

**UOP LLC (100.0%)  
25 East Algonquin Road P.O. Box 5017  
Des Plaines, Illinois 60017-5017, US**

72 Inventor/es:

**NICHOLAS, CHRISTOPHER P.;  
MILLER, MARK A. y  
NEGIZ, ANTOINE**

74 Agente/Representante:

**LEHMANN NOVO, María Isabel**

ES 2 704 982 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

Transformación aromática usando zeolita de aluminosilicato UZM-39

Campo de la invención

5 La presente divulgación se refiere al uso de una nueva familia de zeolitas de aluminosilicato denominadas UZM-39 como material compuesto catalítico para reacciones de transformación aromática. La familia de zeolitas está representada por la fórmula empírica de:



10 donde M representa un metal o metales de cinc o el grupo 1 (IUPAC 1), grupo 2 (IUPAC 2), grupo 3 (IUPAC 3) o la serie de lantánidos de la tabla periódica, T es el agente de dirección orgánico derivado de reactivos R y Q donde R es un alcano A, $\Omega$ -dihalosubstituido tal como 1,4-dibromobutano y Q es al menos una amina neutra que tiene 6 o menos átomos de carbono tal como 1-metilpirrolidina. E es un elemento estructural tal como galio.

Antecedentes de la invención

15 Las zeolitas son composiciones de aluminosilicato cristalinas que son microporosas y que se forman a partir de tetraedros que comparten en las aristas  $\text{AlO}_2$  y  $\text{SiO}_2$ . Se usan numerosas zeolitas, tanto de origen natural como preparadas sintéticamente en diversos procesos industriales. Las zeolitas sintéticas se preparan mediante síntesis hidrotérmica que emplea fuentes adecuadas de Si, Al y agentes de dirección estructurales tales como metales alcalinos, metales alcalinotérreos, aminas o cationes de organoamonio. Los agentes de dirección estructurales residen en los poros de la zeolita y son responsables en gran medida de la estructura particular que se forma finalmente. Estas especies equilibran la carga estructural asociada con el aluminio y también pueden servir como rellenos del espacio. Las zeolitas se caracterizan por tener aberturas de poro de dimensiones uniformes, por tener una capacidad de intercambio iónico significativa y por poder desorber de forma reversible una fase adsorbida que se dispersa por todos los espacios internos del cristal sin desplazar significativamente ningún átomo que componga la estructura cristalina permanente de la zeolita. Las zeolitas pueden usarse como catalizadores para reacciones de conversión de hidrocarburos, que pueden tener lugar en superficies exteriores, así como superficies interiores dentro del poro.

20 Una zeolita particular, denominada TNU-9, se divulgó por primera vez por Hong *et al.* en 2004, (*J. Am. Chem. Soc.* 2004, 126, 5817-26) y después en una patente coreana concedida en 2005, KR 480229. Este informe y patente estuvo seguido por un informe completo de la síntesis en 2007 (*J. Am. Chem. Soc.* 2007, 129, 10870-85). Estos artículos describen la síntesis de TNU-9 a partir del agente de dirección estructural dicatiónico flexible, dibromuro de 1,4-bis(N-metilpirrolidinio)butano en presencia de sodio. Después de resolver la estructura de TNU-9 (*Nature*, 2006, 444, 79-81), la International Zeolite Association Structure Commission dio el código de TUN a este tipo de estructura de zeolita, véase Atlas of Zeolite Framework Types, que está mantenido por la International Zeolite Association Structure Commission en <http://www.iza-structure.org/databases/>. El tipo de estructura TUN se encontró que contenía 3 conjuntos mutuamente ortogonales de canales en que cada canal está definido por un anillo de 10 miembros de átomos coordinados tetraédricamente. Además, existen 2 tamaños diferentes de canales de anillo de 10 miembros en la estructura.

30 Otra zeolita particular, IM-5 se divulgó por primera vez por Benazzi, *et al.* en 1996 (documento FR 96/12873; documento WO 98/17581) que describe la síntesis de IM-5 a partir del agente de dirección estructural dicatiónico flexible, dibromuro de 1,5-bis(N-metilpirrolidinio)pentano o dibromuro de 1,6-bis(N-metilpirrolidinio)hexano en presencia de sodio. Después de haber resuelto la estructura de IM-5 por Baerlocher *et al.* (*Science*, 2007, 315, 113-6), la International Zeolite Structure Commission dio el código de IMF a este tipo de estructura de zeolita, véase Atlas of Zeolite Framework Types. El tipo de estructura IMF también se encontró que contenía tres conjuntos mutuamente ortogonales de canales en que cada canal está definido por un anillo de 10 miembros de átomos coordinados tetraédricamente, sin embargo, la conectividad en la tercera dimensión está interrumpida cada 2,5 nm, por lo tanto, la difusión es algo limitada. Además, existen múltiples tamaños diferentes de canales de anillo de 10 miembros en la estructura.

El documento US 2010/0152570 describe un proceso de conversión de hidrocarburos usando composiciones zeolíticas cristalinas denominadas UZM-26 y UZM-26X.

50 El documento US 2011/0245563 describe un proceso de alquilación aromática usando la zeolita de aluminosilicato UZM-37.

El documento US 2011/0245564 describe procesos usando zeolita de aluminosilicato UZM-37.

El documento US 8071830 describe procesos para la alquilación de hidrocarburos aromáticos usando UZM-35.

Los solicitantes han preparado satisfactoriamente una nueva familia de materiales denominada UZM-39. La topología de los materiales es similar a la observada para TNU-9 e IM-5. Los materiales se preparan mediante el uso

de una mezcla de agentes de dirección estructural disponibles en el mercado simples, tales como 1,4-dibromobutano y 1-metilpirrolidina, en concierto con Na<sup>+</sup> usando la estrategia de conversión de material estratificado para la síntesis de zeolita (descrito a continuación).

5 Los solicitantes han demostrado satisfactoriamente la eficacia de este tipo de zeolita en reacciones de transformación aromática.

Sumario de la invención

10 Como se indica, la presente divulgación se refiere al uso de un nuevo material compuesto catalítico que comprende un material compuesto que ha crecido coherentemente de zeolitas TUN e IMF denominadas UZM-39 como material compuesto catalítico en un proceso para transformación aromática. La zeolita cristalina microporosa tiene una trama tridimensional de al menos unidades tetraédricas de AlO<sub>2</sub> y SiO<sub>2</sub> y una composición empírica en la base sintetizada y anhídrica expresada por una fórmula empírica de:



15 donde "n" es la relación molar de Na a (Al + E) y tiene un valor de 0,05 a 0,5, M representa al menos un metal seleccionado del grupo que consiste en cinc, grupo 1 (IUPAC 1), grupo 2 (IUPAC 2), grupo 3 (IUPAC 3) y la serie de lantánidos de la tabla periódica, y cualquier combinación de los mismos, "m" es la relación molar de M a (Al + E) y tiene un valor de 0 a 0,5, "k" es el promedio de carga del metal o metales M, T es el agente o agentes de dirección estructural orgánicos derivados de reactivos R y Q donde R es un alcano sustituido con A,Ω-dihalógeno que tiene de 3 a 6 átomos de carbono y Q es al menos una monoamina neutra que tiene 6 o menos átomos de carbono, "t" es la relación molar de N del agente o agentes de dirección estructural orgánicos respecto a (Al + E) y tiene un valor de 0,5 a 1,5, E es un elemento seleccionado del grupo que consiste en galio, hierro, boro y combinaciones de los mismos, "x" es la fracción molar de E y tiene un valor de 0 a 1,0, "y" es la relación molar de Si a (Al + E) y varía de más de 9 a 25 y "z" es la relación molar de O a (Al + E) y tiene un valor determinado por la ecuación:

$$z = (n + k \cdot m + 3 + 4 \cdot y)/2$$

25 y se caracteriza por que tiene regiones TUN y región IMF que están alineadas coherentemente de modo que el eje de la zona [010]<sub>TUN</sub> y el eje de la zona [001]<sub>IMF</sub> son paralelos entre sí y hay continuidad de los planos cristalinos del tipo (002)<sub>TUN</sub> y (060)<sub>IMF</sub>, donde la indización se refiere a celdas de unidad C<sub>2/m</sub> monoclinica y C<sub>mcm</sub> ortorrómbica para TUN e IMF, respectivamente.

30 La zeolita cristalina microporosa también puede describirse con una trama tridimensional de al menos unidades tetraédricas de AlO<sub>2</sub> y SiO<sub>2</sub> y una composición empírica en la base sintetizada y anhídrica expresada por una fórmula empírica de:



35 donde "n" es la relación molar de Na a (Al + E) y tiene un valor de 0,05 a 0,5, M representa un metal o metales del grupo 1 (IUPAC 1), grupo 2 (IUPAC 2), grupo 3 (IUPAC 3), la serie de lantánidos de la tabla periódica o cinc, "m" es la relación molar de M a (Al + E) y tiene un valor de 0 a 0,5, "k" es el promedio de carga del metal o metales M, T es el agente o agentes de dirección estructural orgánicos derivados de reactivos R y Q donde R es un alcano sustituido con A,Ω-dihalógeno que tiene entre 3 y 6 átomos de carbono y Q es al menos una monoamina neutra que tiene 6 o menos átomos de carbono, "t" es la relación molar de N del agente o agentes de dirección estructural orgánicos respecto a (Al + E) y tiene un valor de 0,5 a 1,5, E es un elemento seleccionado del grupo que consiste en galio, hierro, boro y combinaciones de los mismos, "x" es la fracción molar de E y tiene un valor de 0 a 1,0, "y" es la relación molar de Si a (Al + E) y varía de más de 9 a 25 y "z" es la relación molar de O a (Al + E) y tiene un valor determinado por la ecuación:

$$z = (n + k \cdot m + 3 + 4 \cdot y)/2$$

45 y la zeolita se caracteriza por que tiene el patrón de difracción de rayos X que tiene al menos los espaciados-d e intensidades expuestos en la tabla A1

Tabla A1

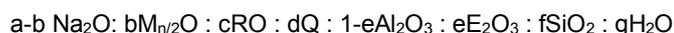
2θ	d(Å)	I/I <sub>o</sub> %
7,17-7,21	12,25-12,31	vw-m
7,5-8,1*	11,78-10,91	w-m
8,88	9,95	m
9,17	9,63	w-m
12,47-12,62	7,09-7,00	w-m
17,7	5,01	vw-m
22,8-23,2	3,90-3,83	vs

2θ	d(Å)	I/Io %
23,39-23,49	3,80-3,78	m-s
25,01-25,31	3,56-3,52	m
28,74-29,25	3,10-3,05	w-m
45,08-45,29	2,01-2,00	w

\* pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes

La zeolita es térmicamente estable hasta una temperatura de más de 600 °C en una realización y al menos 800 °C en otra realización.

5 La estrategia de conversión de material estratificado puede usarse para preparar la zeolita microporosa cristalina descrita anteriormente. El proceso comprende formar una mezcla de reacción que contiene fuentes reactivas de Na, R, Q, Al, Si, semillas de un material estratificado L y opcionalmente E y/o M y calentar la mezcla de reacción a una temperatura de 150 °C a 200 °C, de 155 °C a 190 °C o de 160 °C a 180 °C, durante un tiempo suficiente para formar la zeolita. L no tiene la misma zeolita que el material compuesto que ha crecido coherentemente UZM-39. La mezcla de reacción tiene una composición expresada en términos de relaciones molares de los óxidos de:



10 donde "a" tiene un valor de 10 a 30, "b" tiene un valor de 0 a 30, "c" tiene un valor de 1 a 10, "d" tiene un valor de 2 a 30, "e" tiene un valor de 0 a 1.0, "f" tiene un valor de 30 a 100, "g" tiene un valor de 100 a 4000. Adicionalmente, la mezcla de reacción comprende de un 1 a un 10 % en peso de zeolita de semilla L basada en la cantidad de SiO<sub>2</sub> en la mezcla de reacción, por ejemplo, si hay 100 g de SiO<sub>2</sub> en la mezcla de reacción, se añadiría de 1 a 10 g de zeolita de semilla L a la mezcla de reacción. Con este número de fuentes de reactivo que reacciona, pueden preverse muchos órdenes de adición. Típicamente, el reactivo de aluminio se disuelve en el hidróxido de sodio antes de añadir los reactivos de sílice. Como puede observarse en los ejemplos, los reactivos R y Q pueden añadirse juntos a por separado en muchos órdenes diferentes de adición.

20 Otro aspecto más de la presente divulgación es un proceso de conversión de hidrocarburo usando la zeolita descrita anteriormente. El proceso comprende poner en contacto el hidrocarburo con la zeolita en condiciones de conversión para dar un hidrocarburo convertido. Específicamente, la zeolita es útil como material compuesto catalítico en reacciones de transformación aromática. Al menos un primer aromático se pone en contacto con la zeolita para producir al menos un segundo aromático. Una realización específica del proceso es un proceso para producir metilaromáticos poniendo en contacto al menos un alcano C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub> y benceno con la zeolita UZM-39 para generar al menos un aromático metilado. Los ejemplos de aromáticos metilados comercialmente importantes incluyen tolueno y xilenos. Las reacciones pueden implicar craqueo, alquilación aromática y transalquilación.

Breve descripción de los dibujos

La figura 1 es un patrón de XRD de la zeolita UZM-39 formada en el ejemplo 1. Este patrón muestra la zeolita UZM-39 en la forma sintetizada.

30 La figura 2 es también un patrón de XRD de la zeolita UZM-39 formada en el ejemplo 1. Este patrón muestra la zeolita UZM-39 después de la calcinación.

La figura 3 es un patrón de XRD de la zeolita UZM-39 formada en el ejemplo 16. Este patrón muestra la zeolita UZM-39 en la forma sintetizada.

La figura 4 es también un patrón de XRD de la zeolita UZM-39 formada en el ejemplo 16. Este patrón muestra la zeolita UZM-39 en la forma H<sup>+</sup>.

35 La figura 5 es un patrón de XRD de la zeolita UZM-39 formada en el ejemplo 28. Este patrón muestra la zeolita UZM-39 en la forma sintetizada.

La figura 6 es también un patrón de XRD de la zeolita UZM-39 formada en el ejemplo 28. Este patrón muestra la zeolita UZM-39 en la forma H<sup>+</sup>.

40 La figura 7 muestra los resultados de caracterización por microscopía electrónica de barrido de alta resolución del producto UZM-39 del ejemplo 1. La micrografía electrónica muestra que UZM-39 se forma en listones que se parecen a partículas de varilla rectangulares, a menudo con una disposición de grupo en forma de estrella. Las varillas de grupo en forma de estrella de UZM-39 pueden observarse en los resultados de microscopía electrónica de barrido de la figura 7.

45 La figura 8 muestra los resultados de caracterización por microscopía electrónica de barrido de alta resolución de una UZM-39 diferente, la del producto del ejemplo 18. La micrografía electrónica también muestra listones que se parecen a partículas de varilla rectangulares con varias disposiciones de grupo en forma de estrella.

La figura 9 muestra una representación de tipo alambre de la trama TUN en el plano AC (izquierda). Cada vértice es

un sitio T y en el centro de cada bastón hay un átomo de oxígeno. Una representación de tipo alambre de la trama IMF en el plano AB se muestra a la derecha. A lo largo de estas proyecciones, tanto las tramas TUN como IMF contienen proyecciones casi idénticas de cadenas de 5 anillos conectados por canales de 6 anillos y 10 anillos.

5 La figura 10 muestra los resultados de caracterización por microscopia electrónica de transmisión del producto UZM-39 del ejemplo 17 usando imágenes de alta resolución y difractogramas ópticos informatizados. Los resultados muestran que UZM-39 está comprendida de una estructura compuesta que ha crecido coherentemente de zeotipos TUN e IMF.

10 La figura 11 es un análisis de difracción electrónica de la partícula de varilla en sección transversal de la figura 10 y muestra que a partir de lo que parece ser una partícula de zeolita cristalina individual, se encuentran zonas que indizan al eje de zona [010] de TUN y al eje de zona [001] de IMF. Las regiones TUN y las regiones IMF están coherentemente alineadas.

La figura 12 es un gráfico de la región de ángulo inferior en análisis de XRD de materiales que muestran que porcentajes pequeños de IMF pueden determinarse en muestras que consisten en gran medida de TUN.

15 La figura 13 es un gráfico de la región de ángulo inferior en análisis de XRD de materiales que muestran que porcentajes pequeños de TUN pueden determinarse en muestras que consisten en gran medida de IMF.

#### Descripción detallada de la invención

20 Los solicitantes han preparado un componente catalítico adecuado para catalizar reacciones de transformación aromática donde el componente catalítico es una zeolita de aluminosilicato cuya estructura topológica está relacionada con TUN como se describe en Atlas of Zeolite Framework Types, que está mantenido por la International Zeolite Association Structure Commission en <http://www.iza-structure.org/databases/>, cuyo miembro se ha denominada TNU-9. Como se mostrará en detalle, UZM-39 es diferente de TNU-9 en varias de sus características, incluyendo su patrón de difracción de rayos-X (XRD). UZM-39 también está relacionada con IMF como se describe en el Atlas of Zeolite Framework Types, cuyo miembro se ha denominado IM-5. Como se mostrará en detalle, UZM-39 es diferente de TNU-9 e IM-5 en varias de sus características, incluyendo su patrón de difracción de rayos X. La presente zeolita cristalina microporosa (UZM-39) tiene una composición empírica en la base sintetizada y anhídrica expresada por la fórmula empírica de:



30 donde "n" es la relación molar de Na a (Al + E) y tiene un valor de 0,05 a 0,5, M representa al menos un metal o metales seleccionados del grupo que consiste en cinc, grupo 1 (IUPAC 1), grupo 2 (IUPAC 2), grupo 3 (IUPAC 3), la serie de lantánidos de la tabla periódica, y cualquier combinación de los mismos, "m" es la relación molar de M a (Al + E) y tiene un valor de 0 a 0,5, "k" es el promedio de carga del metal o metales M, T es el agente o agentes de dirección estructural orgánicos derivados de reactivos R y Q donde R es un alcano sustituido con A,Ω-dihalógeno que tiene de 3 a 6 átomos de carbono y Q es al menos una monoamina neutra que tiene 6 o menos átomos de carbono, "t" es la relación molar de N del agente o agentes de dirección estructural orgánicos respecto a (Al + E) y tiene un valor de 0,5 a 1,5, E es un elemento seleccionado del grupo que consiste en galio, hierro, boro y combinaciones de los mismos, "x" es la fracción molar de E y tiene un valor de 0 a 1,0, "y" es la relación molar de Si a (Al + E) y varía de más de 9 a 25 y "z" es la relación molar de O a (Al + E) y tiene un valor determinado por la ecuación:

$$z = (n + k \cdot m + 3 + 4 \cdot y)/2$$

40 Cuando M es únicamente un metal, entonces el promedio de valencia ponderado es la valencia de ese metal, es decir, +1 o +2. Sin embargo, cuando hay más de un metal M presente, la cantidad de total de:

$$M_m^k = M_{m1}^{(k1)} + M_{m2}^{(k2)} + M_{m3}^{(k3)} + M_{m4}^{(k4)} + \dots$$

y el promedio de la valencia ponderado "k" se da por la ecuación:

$$k = \frac{m1 \cdot k1 + m2 \cdot k2 + m3 \cdot k3 \dots}{m1 + m2 + m3 \dots}$$

45 En una realización, la zeolita cristaliza microporosa, UZM-39, se sintetiza mediante una cristalización hidrotérmica de una mezcla de reacción preparada combinando fuentes reactivas de sodio, agente o agentes de dirección estructural orgánicos T, aluminio, silicio, semillas de un material estratificado L y, opcionalmente, E, M o ambos. Las fuentes de aluminio incluyen, aunque sin limitación, alcóxidos de aluminio, alúminas precipitadas, metal de aluminio, hidróxido de aluminio, aluminato de sodio, sales de aluminio y soles de alúmina. Ejemplos específicos de alcóxidos de aluminio incluyen, aunque sin limitación, sec-butóxido de aluminio y ortoisopropóxido de aluminio. Las fuentes de sílice incluyen, aunque sin limitación, tetraetilortosilicato, sílice coloidal, sílice precipitada y silicatos alcalinos. Las

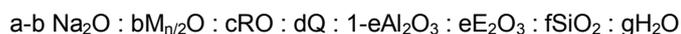
fuentes de sodio incluyen, aunque sin limitación, hidróxido de sodio, aluminato de sodio, bromuro de sodio y silicato de sodio.

T es el agente o agentes de dirección estructural orgánicos derivados de reactivos R y Q donde R es un alcano sustituido con A,Ω-dihalógeno que tiene entre 3 y 6 átomos de carbono y Q comprende al menos una monoamina neutra que tiene 6 o menos átomos de carbono. R puede ser un alcano sustituido con A,Ω-dihalógeno que tiene entre 3 y 6 átomos de carbono seleccionado del grupo que consiste en 1,3-dicloropropano, 1,4-diclorobutano, 1,5-dicloropentano, 1,6-diclorohexano, 1,3-dibromopropano, 1,4-dibromobutano, 1,5-dibromopentano, 1,6-dibromohexano, 1,3-diiodopropano, 1,4-diiodobutano, 1,5-diiodopentano, 1,6-diiodohexano y combinaciones de los mismos. Q comprende al menos una monoamina neutra que tiene 6 o menos átomos de carbono tal como 1-etilpirrolidina, 1-metilpirrolidina, 1-etilazetidina, 1-metilazetidina, trietilamina, dietilmetilamina, dimetilmetilamina, trimetilamina, dimetilbutilamina, dimetilpropilamina, dimetilisopropilamina, metiletilpropilamina, metiletilisopropilamina, dipropilamina, diisopropilamina, ciclopentilamina, metilciclopentilamina, hexametiliminina. Q puede comprender combinaciones de múltiples monoaminas neutras que tienen 6 o menos átomos de carbono.

L comprende al menos una semilla de una zeolita estratificada. Las zeolitas de semilla adecuadas son materiales estratificados que son zeolitas microporosas con un grosor cristalino en al menos una dimensión de menos de 30 a 50 nm. Los materiales microporosos tienen diámetros de poro de menos de 2 nm. La zeolita estratificada de semilla es de una zeolita diferente al material compuesto que ha crecido coherentemente UZM-39 que se sintetiza. Los ejemplos de materiales estratificados adecuados incluyen, aunque sin limitación, UZM-4M (US6776975), UZM-5 (US6613302), UZM-8 (US6756030), UZM-8HS (US7713513), UZM-26 (US-2010-0152023-A1), UZM-27 (US7575737), BPH, materiales FAU/EMT, \*BEA o zeolita Beta, miembros de la familia MWW tal como MCM-22P y MCM-22, MCM-36, MCM-49, MCM-56, ITQ-1, ITQ-2, ITQ-30, ERB-1, EMM-10P y EMM-10, SSZ-25, y SSZ-70, así como materiales microporosos más pequeños tales como PREFER (preferierita), NU-6 y similares.

M representa al menos un catión intercambiable de un metal o metales del grupo 1 (IUPAC 1), grupo 2 (IUPAC 2), grupo 3 (IUPAC 3) o la serie de lantánidos de la tabla periódica y/o cinc. Ejemplos específicos de M incluyen, aunque sin limitación, litio, potasio, rubidio, cesio, magnesio, calcio, estroncio, bario, cinc, itrio, lantano, gadolinio y mezclas de los mismos. Las fuentes reactivas de M incluyen, aunque sin limitación, el grupo que consiste en haluro, nitrato, sulfato, hidróxido o sales acetato. E es un elemento seleccionado del grupo que consiste en galio, hierro, boro y combinaciones de los mismos, y las fuentes reactivas adecuadas incluyen, aunque sin limitación, ácido bórico, oxihidróxido de galio, sulfato de galio, nitrato de galio, sulfato férrico, nitrato férrico, cloruro férrico y mezclas de los mismos.

La mezcla de reacción que contiene fuentes reactivas de los componentes deseados puede describirse en términos de relaciones molares de los óxidos por la fórmula:



donde "a" tiene un valor de 10 a 30, "b" tiene un valor de 0 a 30, "c" tiene un valor de 1 a 10, "d" tiene un valor de 2 a 30, "e" tiene un valor de 0 a 1.0, "f" tiene un valor de 30 a 100, "g" tiene un valor de 100 a 4000. Adicionalmente, en la mezcla de reacción hay de un 1 a un 10 % en peso de zeolita de semilla L basado en la cantidad de SiO<sub>2</sub> en la de reacción, por ejemplo, si hay 100 g de SiO<sub>2</sub> en la mezcla de reacción, se añadiría de 1 a 10 g de zeolita de semilla L. Los ejemplos demuestran varios órdenes específicos de adición para la mezcla de reacción que da lugar a UZM-39. Sin embargo, como hay al menos 6 materiales de partida, son posibles muchos órdenes de adición. Por ejemplo, los cristales de semilla L pueden añadirse como el último ingrediente a la mezcla de reacción, a la fuente de Si reactiva o en otros puntos adecuados. Además, si se usan alcóxidos, se prefiere incluir una etapa de destilación o de evaporación para eliminar los productos de hidrólisis de alcohol. Aunque los agentes de dirección estructural orgánicos R y Q pueden añadirse por separado o juntos a la mezcla de reacción en varios puntos en el proceso, se prefiere mezclar R y Q juntos a temperatura ambiente y añadir la mezcla combinada a una mezcla enfriada de fuentes de Si, Al y Na reactivas mantenidas a 0-10 °C. Como alternativa, la mezcla de R y Q, después de mezclar a temperatura ambiente, podría enfriarse y las fuentes reactivas de Si, Al y Na añadirse a la mezcla de agente de dirección estructural orgánico mientras se mantiene una temperatura de 0-10 °C. En una realización alternativa, los reactivos R y Q podrían añadirse, por separado o juntos, a la mezcla de reacción a temperatura ambiente.

La mezcla de reacción entonces se hace reaccionar a una temperatura de 150 °C a 200 °C, de 155 °C a 190 °C o de 160 °C a 180 °C, durante un periodo de 1 día a 3 semanas y preferiblemente durante un tiempo de 3 días a 12 días en un recipiente de reacción precintado agitado a presión autógena. Después de completarse la cristalización, el producto sólido se aísla de la mezcla heterogénea por medios tales como filtración o centrifugación, y después se lava con agua desionizada y se seca al aire a temperatura ambiente hasta 100 °C.

El material compuesto que ha crecido coherentemente sintetizado de zeotipos TUN e IMF, UZM-39, se caracteriza por el patrón de difracción de rayos X, que tiene al menos los espaciados-d y las intensidades relativas expuestas en las tablas A1-A3 a continuación. Los patrones de difracción en la presente memoria se obtuvieron usando un difractor de polvo de laboratorio típico utilizando la línea K<sub>α</sub> de cobre; Cu K alfa. De la posición de los picos de difracción representados por el ángulo 2θeta, pueden calcularse las distancias interplanares características d<sub>hkl</sub> de la muestra usando la ecuación de Bragg. La intensidad se calcula basándose en la escala de intensidad relativa que

5 atribuye un valor de 100 a la línea que representa el pico más fuerte en el patrón de difracción de rayos X, y después: muy débil (vw) significa menos de 5; débil (w) significa menos de 15; media (m) significa en el intervalo de 15 a 50; fuerte (s) significa en el intervalo de 50 a 80; muy fuerte (vs) significa más de 80. Las intensidades también pueden mostrarse como intervalos inclusivos de los anteriores. Los patrones de difracción de rayos X de los que se obtienen los datos (espaciado-d e intensidad) se caracterizan por una gran cantidad de reflejos, algunos de los cuales son picos amplios o picos que forman desniveles en los picos de mayor intensidad. Algunos o todos los desniveles pueden no estar resueltos. Este puede ser el caso para muestra de baja cristalinidad, de estructuras compuestas que han crecido coherentemente particulares o para muestras con cristales que son suficientemente pequeños para causar ensanchamiento significativo de los rayos X. Este también puede ser el caso cuando el equipo o las condiciones de funcionamiento usadas para producir el patrón de difracción difieren significativamente de los usados en el presente caso.

10 El patrón de difracción de rayos X para UZM-39 contiene muchos picos. Se muestran ejemplos de los patrones de difracción de rayos X para diversos productos UZM-39 sintetizados en la figura 1, 3 y 5. Esos picos característicos de UZM-39 se muestran en las tablas A1-A3 para diversas estructuras compuestas que han crecido coherentemente. También puede haber picos adicionales, particularmente los de intensidad muy débil presentes. Todos los picos de intensidad media a más alta presentes en la familia de UZM-39 de estructuras compuestas que han crecido coherentemente están representadas en al menos la tabla A3,

15 La tabla A1 contiene espaciados-d seleccionados e intensidades relativas del patrón de difracción de rayos X de UZM-39. Las intensidades relativas se muestran como un intervalo que cubre materiales de UZM-39 con cantidades relativas variables de zeotipos TUN e IMF.

Tabla A1

2θ	d(Å)	I/Io %
7,17-7,21	12,25-12,31	vw-m
7,5-8,1*	11,78-10,91	w-m
8,88	9,95	m
9,17	9,63	w-m
12,47-12,62	7,09-7,00	w-m
17,7	5,01	vw-m
22,8-23,2	3,90-3,83	vs
23,39-23,49	3,80-3,78	m-s
25,01-25,31	3,56-3,52	m
28,74-29,25	3,10-3,05	w-m
45,08-45,29	2,01-2,00	w

\* pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes

25 La zeolita puede caracterizarse además por el patrón de difracción de rayos X que tiene al menos los espaciados-d e intensidades expuestos en la tabla A2 donde los espaciados-d y las intensidades se proporcionan a diferentes concentraciones relativas de los componentes de la estructura compuesta que ha crecido coherentemente.

Tabla A2

I			II			III		
alta en TUN, baja en IMF			media en TUN, media en IMF			baja en TUN, alta en IMF		
2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Theta	d(†)	I/Io %
7,21	12,25	w-m	7,17	12,31	w-m	7,21	12,25	vw
7,5-8,1*	11,78-10,91	w-m	7,5-8,1*	11,78-10,91	w-m	7,5-8,1*	11,78-10,91	w-m
8,88	9,95	m	8,88	9,95	s	8,88	9,95	m
9,17	9,63	m	9,16	9,65	m	9,17**	9,63	w-m
9,34**	9,46	vw-w	9,30	9,50	m	9,33	9,47	m
12,62	7,00	w	12,50	7,08	w-m	12,47	7,09	w-m
17,70	5,01	vw-w	17,72	5,00	w-m	17,70	5,01	vw-w
19,20	4,62	w-m	22,8-23,2*	3,90-3,83	vs	18,71	4,74	w-m
22,89	3,88	vs	23,43	3,79	s	22,55	3,94	m
23,49	3,78	m	25,12	3,54	m	23,03	3,86	vs
25,31	3,52	m	28,74-29,25*	3,10-3,05	w-m	23,39	3,80	s
29,10	3,07	w	45,29	2,00	w	25,01	3,56	m
45,08	2,01	w				28,76	3,10	w-m
						45,08	2,01	w
* pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes								
** típicamente un desnivel								

La zeolita puede caracterizarse además también por el patrón de difracción de rayos X que tiene al menos los espaciados-d e intensidades expuestos en la tabla A3, donde los espaciados-d y las intensidades se proporcionan a diferentes concentraciones relativas de los componentes de la estructura compuesta que ha crecido coherentemente.

5

Tabla A3

I			II			III		
alta en TUN, baja en IMF			media TUN, media en IMF			baja en TUN, alta en IMF		
2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Teta	d(†)	I/Io %
7,21	12,25	w-m	7,17	12,31	w-m	7,21	12,22	vw
7,5-8,1*	11,78-10,91	w-m	7,5-8,1*	11,78-10,91	w-m	7,5-8,1*	11,78-10,91	w-m
8,88	9,95	m	8,88	9,95	m-s	8,88	9,95	m
9,17	9,63	m	9,16	9,65	m	9,17**	9,63	w-m
9,34**	9,46	vw-w	9,30	9,50	m	9,33	9,47	m
9,98	8,85	vw	12,50	7,08	w-m	12,47	7,09	w-m
11,68	7,57	vw	15,27	5,80	vw-w	12,85	6,88	vw
12,62	7,00	w	15,58	5,68	w	14,62	6,05	vw-w
13,69	6,46	vw-w	17,70	5,01	vw-w	15,27	5,80	w
15,33	5,77	vw-w	18,72	4,74	vw-m	15,57	5,68	w
16,48	5,37	vw-w	19,28	4,60	w	16,60	5,34	w
17,01	5,20	vw	22,61**	3,93	w-m	17,70	5,01	vw-w
17,70	5,01	vw-w	22,8-23,2*	3,90-3,83	vs	18,71	4,74	w-m
19,20	4,62	w-m	23,43	3,79	s	19,30	4,59	w
21,59	4,11	vw-w	24,20	3,68	m	22,55	3,94	m
22,61**	3,93	w-m	25,12	3,54	m	22,86**	3,89	m-s
22,89	3,88	vs	26,34	3,38	w-m	23,03	3,86	vs
23,49	3,78	m	26,75	3,33	w-m	23,39	3,80	s
23,93	3,72	vw-w	28,74-29,25*	3,10-3,05	w-m	24,17	3,68	m
24,13	3,68	m	35,72	2,51	vw-w	25,01	3,56	m
24,64	3,61	w	45,29	2,00	w	26,19	3,40	vw-w
24,93	3,57	w	45,62-47,19*	1,99-1,92	vw-w	26,68	3,34	w-m
25,31	3,52	m				28,76	3,10	w-m
26,62	3,35	w				35,72	2,51	vw-w
29,10	3,07	w				45,08	2,01	w
35,72	2,51	vw-w				45,62-47,19*	1,99-1,92	vw-w
45,08	2,01	w						
45,62-47,19*	1,99-1,92	vw-w						

\* pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes

\*\* típicamente un desnivel

En las tablas A2 y A3, el término "alta" se refiere a un 60 hasta un 95 % en masa del componente especificado, el término "media" se refiere a un 25 hasta un 70 % en masa del componente especificado y el término "baja" se refiere a un 5 hasta un 40 % en masa del componente especificado. Algunos picos pueden ser desniveles sobre picos más intensos y algunos picos pueden ser un pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes.

10 Como se mostrará en detalle en los ejemplos, el material UZM-39 es térmicamente estable hasta una temperatura de al menos 600 °C y en otra realización, hasta al menos 800 °C. También como se muestra en los ejemplos, el material UZM-39 puede tener un volumen de microporos como un porcentaje del volumen de poros total de más de un 60 %.

15 La caracterización del producto UZM-39 por microscopía electrónica de barrido de alta resolución muestra que la UZM-39 se forma enlistones que se parecen a partículas de varilla rectangulares, a menudo con una disposición de grupo en forma de estrella. Las varillas de grupo en forma de estrella de UZM-39 pueden observarse en los resultados de microscopía electrónica de barrido para dos productos UZM-39 particulares en la figura 7 y en la figura 8.

20 UZM-39 es una estructura compuesta que ha crecido coherentemente de zeotipos TUN e IMF. Por estructura compuesta que ha crecido coherentemente se entiende que ambas estructuras están presentes en una porción principal de los cristales en una muestra dada. Esta estructura compuesta que ha crecido coherentemente es posible cuando las dos estructuras zeotípicas tienen disposiciones espaciales casi idénticas de átomos a lo largo de al menos una proyección plana de su estructura cristalina y posee topologías de poros similares. La figura 9 muestra una representación de tipo alambre de la trama TUN en el plano AC (izquierda). Cada vértice es un sitio tetraédrico (o sitio T) y en el centro de cada bastón hay un átomo de oxígeno compartido en la esquina. Una representación de

25

tipo alambre de la trama IMF en el plano AB se muestra en la derecha de la figura 9. A lo largo de estas proyecciones, ambos zeotipos TUN e IMF contiene proyecciones casi idénticas de cadenas de 5 anillos conectadas por 6 anillos y 10 anillos que forman canales que discurren perpendiculares al plano.

5 Como ambos zeotipos TUN e IMF son zeolitas de 10 anillos tridimensionales y tienen proyecciones casi idénticas en un plano, las dos estructuras pueden hacer crecer coherentemente de ese modo cristales de la otra estructura con superficies de contacto en los planos compatibles para formar una estructura compuesta que ha crecido coherentemente.

10 Una estructura compuesta que ha crecido coherentemente no es una mezcla física de los dos tamices moleculares. Se emplea difracción electrónica, microscopía electrónica de transmisión y análisis de difracción de rayos X para mostrar que un material es una estructura compuesta que ha crecido coherentemente en lugar de una mezcla física. Habitualmente la combinación de difracción electrónica e imágenes TEM es la más definitiva en la determinación de si se ha producido una estructura compuesta que ha crecido coherentemente porque proporciona evidencias directas de la existencia de ambas estructuras dentro de un cristal.

15 Como las zeolitas de estructura compuesta que ha crecido coherentemente de esta invención pueden tener cantidades variables de los dos tipos de estructura, debe entenderse que la intensidad relativa y la anchura de línea de algunas de las líneas de difracción variarán dependiendo de la cantidad de cada estructura presente en la estructura compuesta que ha crecido coherentemente. Aunque el grado de variación en los patrones de difracción de polvo de rayos X es teóricamente predecible para estructuras específicas, el modo más probable de una estructura compuesta que ha crecido coherentemente es de naturaleza aleatoria y, por lo tanto, difícil de predecir sin el uso de modelos hipotéticos grandes como bases para el cálculo.

20 A diferencia de una mezcla física de TNU-9 e IM-5, el análisis de microscopía electrónica de transmisión (TEM) usando imágenes de alta resolución y difractogramas ópticos informatizados muestra que UZM-39 está comprendida de una estructura compuesta que ha crecido coherentemente de zeotipos TUN e IMF.

25 En la figura 10, el análisis de TEM de una partícula de varilla de sección transversal del producto del ejemplo 17 muestra que existen áreas con estructura TUN e IMF como subregiones coherentes dentro de una partícula de zeolita efectivamente cristalina individual. En el lado izquierdo de la figura 11, el análisis de difracción electrónica del lado izquierdo de la partícula mostrada en la figura 10 muestra un patrón de difracción electrónico que puede indizarse al plano 002 de TUN. En el lado derecho de la figura 11, se muestra el patrón de difracción electrónica del lado derecho de la partícula mostrada en la figura 10. Este patrón puede indizarse al plano 060 de IMF. Las regiones TUN y las regiones IMF se alinean coherentemente de modo que el eje de la zona  $[010]_{\text{TUN}}$  y el eje de la zona  $[001]_{\text{IMF}}$  son paralelos entre sí y hay continuidad de los planos cristalinos de tipo  $(002)_{\text{TUN}}$  y  $(060)_{\text{IMF}}$ , donde la indización se refiere a celdas de unidad  $C_{2/m}$  monoclinica y  $C_{mcm}$  ortorrómbica para TUN e IMF, respectivamente (detalles de las estructuras encontrados en el sitio web IZA). A pesar de la presencia de los dos zeotipos en diferentes porciones de la partícula, la imagen no muestra ningún límite distintivo que delimite cristales diferentes de TUN e IMF, lo que indica que la partícula es un material compuesto que ha crecido coherentemente.

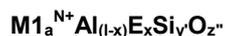
35 Adicionalmente, la zeolita UZM-39 puede caracterizarse por análisis de Rietveld del patrón de XRD. El análisis de Rietveld es una estrategia de mínimos cuadrados desarrollada por Rietveld (*Journal of Applied Crystallography* 1969, 2: 65-71) para refinar un perfil de XRD de línea teórica hasta que ajuste con el patrón de XRD medido lo más posible y es el método preferido de obtención de información estructural de muestras tales como UZM-39 que contienen reflejos fuertemente solapantes. A menudo se usa para cuantificar las cantidades de dos fases diferentes en un difractograma de XRD. La precisión del método de Rietveld se determina por parámetros tales como el tamaño cristalítico (ensanchamiento de pico), función de la forma de pico, constantes de celda de unidad de entramado y ajustes de fondo. Para las muestras mostradas en los ejemplos, los solicitantes han determinado el error en el valor presentando en  $\pm 5\%$  en las condiciones usadas. Los solicitantes también han determinado que el modelo de Rietveld usado no podía cuantificar las cantidades de los componentes de la fase de estructura compuesta minoritarios a valores de menos de un 10 %, pero visualmente, las cantidades de los componentes minoritarios pueden observarse a niveles mayores de un 5 % en comparación con los patrones del modelo. La tabla 1 muestra los resultados de refinado de Rietveld en diversas muestras de UZM-39 de los ejemplos y muestra que UZM-39 contiene más de un 0 y menos de un 100 % en peso de zeotipo IMF y menos de un 100 % en peso y más de un 0 % en peso de zeotipo TUN. En otra realización, UZM-39 contiene más de un 5 y menos de un 95 % en peso de zeotipo IMF y menos de un 95 % en peso y más de un 5 % en peso de zeotipo TUN y en otra realización más, UZM-39 contiene más de un 10 y menos de un 90 % en peso de zeotipo IMF y menos de un 90 % en peso y más de un 10 % en peso de zeotipo TUN. Como puede observarse en la tabla 1 y en los ejemplos, es posible una amplia gama de estructuras compuestas que han crecido coherentemente modificando las condiciones de síntesis.

55 Tal como se sintetiza, el material UZM-39 contendrá algunos cationes intercambiables o de equilibrio de carga en sus poros. Estos cationes intercambiables pueden intercambiarse por otros cationes, o en el caso de cationes orgánicos, pueden eliminarse por calentamiento en condiciones controladas. También es posible eliminar algunos cationes orgánicos de la zeolita UZM-39 directamente por intercambio iónico. La zeolita UZM-39 puede modificarse de muchas maneras para adaptarla para su uso en una aplicación particular. Las modificaciones incluyen calcinación, intercambio iónico, vaporización, diversas extracciones con ácido, tratamiento con hexafluorosilicato de

60

amonio o cualquier combinación de los mismos, como se resume para el caso de UZM-4M en el documento US 6776975 B1. Las condiciones pueden ser más intensas que las mostradas en el documento US 6776975. Las propiedades que se modifican incluyen la porosidad, la adsorción, la relación de Si/Al, la acidez, la estabilidad térmica y similares.

- 5 Después de la calcinación, el intercambio iónico y la calcinación y en una base anhidra, la zeolita cristalina microporosa UZM-39 tiene una trama tridimensional de al menos unidades tetraédricas de AlO<sub>2</sub> y SiO<sub>2</sub> y una composición empírica en la forma de hidrógeno expresada por una fórmula empírica de:



- 10 donde M1 es al menos un catión intercambiable seleccionado del grupo que consiste en metales alcalinos, metales alcalinotérreos, metales de tierras raras, ion amonio, ion hidrógeno y combinaciones de los mismos, "a" es la relación molar de M1 a (Al + E) y varía de 0,05 a 50, "N" es el promedio de la valencia ponderado de M1 y tiene un valor de +1 a +3, E es un elemento seleccionado del grupo que consiste en galio, hierro, boro y combinaciones de los mismos, x es la fracción molar de E y varía de 0 a 1,0, y' es la relación molar de Si a (Al + E) y varía de más de 9 a casi sílice pura y z" es la relación molar de O a (Al + E) y tiene un valor determinado por la ecuación:

15 
$$z'' = (a \cdot N + 3 + 4 \cdot y')/2$$

- En la forma de hidrogeno, después de la calcinación, el intercambio iónico y la calcinación para retirar NH<sub>3</sub>, UZM-39 presenta el patrón de XRD mostrado en la tabla B1-B3. Esos picos característicos de UZM-39 se muestran en las tablas B1-B3 para diversas estructuras compuestas que han crecido coherentemente. También puede haber picos adicionales, particularmente los de intensidad muy débil, presentes. Todos los picos de intensidad media o más alta presentes en la familia de UZM-39 de estructuras compuestas que han crecido coherentemente están representadas en al menos las tablas B3.
- 20

La tabla B1 contiene espaciados-d seleccionados e intensidades relativas del patrón de difracción de rayos X de la forma de hidrógeno de UZM-39. Las intensidades relativas se muestran como un intervalo que cubre materiales de UZM-39 con cantidades relativas variables de zeotipos TUN e IMF.

25 Tabla B1

2θ	d(Å)	I/Io %
7,11-7,16	12,42-12,25	vw-m
7,5-8,1*	11,78-10,91	m-s
8,84	10,00	m-s
9,06-9,08	9,75-9,73	w-m
9,24	9,56	vw-m
12,46-12,53	7,10-7,06	w-m
22,56	3,94	vw-m
22,75-23,2	3,90-3,83	vs
23,40	3,80	m-s
24,12-24,23	3,69-3,67	w-m
24,92-25,37	3,57-3,51	m
28,71-29,27	3,11-3,05	w-m
45,32-45,36	2,00	w

\* pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes

La zeolita puede caracterizarse además por el patrón de difracción de rayos X que tiene al menos los espaciados-d e intensidades expuestos en la tabla B2 donde los espaciados-d y las intensidades se proporcionan a diferentes concentraciones relativas de los componentes de la estructura compuesta que ha crecido coherentemente.

Tabla B2

A			B			C		
alta en TUN, baja en IMF			media en TUN, media en IMF			baja en TUN, alta en IMF		
2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Teta	d(†)	I/Io %
7,12	12,40	w-m	7,11	12,42	w-m	7,16	12,25	vw-w
7,5-8,1*	11,78-10,91	m	7,5-8,1*	11,78-10,91	m-s	7,5-8,1*	11,78-10,91	m-s
8,84	10,00	m-s	8,84	10,00	m-s	8,84	10,00	m-s
9,06	9,75	m	9,08	9,73	m	9,06**	9,75	w
9,24**	9,56	vw-w	9,24	9,56	m	9,24	9,56	m
12,53	7,06	w	12,48	7,09	m	12,46	7,10	m
22,89	3,88	vs	22,56**	3,94	w-m	22,56	3,94	w-m
23,40	3,80	m	22,75-23,2*	3,90-3,83	vs	23,06	3,85	vs

ES 2 704 982 T3

A			B			C		
alta en TUN, baja en IMF			media en TUN, media en IMF			baja en TUN, alta en IMF		
2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Teta	d(†)	I/Io %
24,23	3,67	w-m	23,40	3,80	s	23,40	3,80	s
25,22	3,53	m	24,17	3,68	m	24,12	3,69	m
29,08	3,07	w-m	24,92-25,37*	3,57-3,51	m	25,06	3,55	m
45,36	2,00	w	28,71-29,27*	3,11-3,05	w-m	28,82	3,10	w-m
			45,34	2,00	w	45,32	2,00	w
* pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes								
** típicamente un desnivel								

La zeolita puede caracterizarse además también por el patrón de difracción de rayos X que tiene al menos los espaciados-d e intensidades expuestos en la tabla B3 donde los espaciados-d y las intensidades se proporcionan a diferentes concentraciones relativas de los componentes de la estructura compuesta que ha crecido coherentemente.

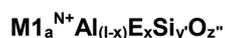
5

Tabla B3

I			II			III		
alta en TUN, baja en IMF			media en TUN, media en IMF			baja en TUN, alta en IMF		
2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Teta	d(†)	I/Io %	2-Teta	d(†)	I/Io %
7,12	12,40	w-m	7,11	12,42	w-m	7,16	12,25	vw-w
7,5-8,1*	11,78-10,91	m	7,5-8,1*	11,78-10,91	m-s	7,5-8,1*	11,78-10,91	m-s
8,84	10,00	m-s	8,84	10,00	m-s	8,84	10,00	m-s
9,06	9,75	m	9,08	9,73	m	9,06**	9,75	w
9,24**	9,56	vw-w	9,24	9,56	m	9,24	9,56	m
12,53	7,06	w	11,76	7,52	vw-w	11,76	7,52	vw-w
14,38	6,15	w	12,48	7,09	m	12,46	7,10	m
14,64	6,05	vw	14,38	6,15	vw-w	14,38	6,15	vw
15,26	5,80	vw-w	14,64	6,05	vw-w	14,64	6,05	w
15,52	5,70	vw	15,26	5,80	w	15,26	5,80	w
16,46	5,38	vw	15,52	5,70	w-m	15,52	5,70	w-m
17,72	5,00	w	16,50	5,37	vw-w	16,58	5,34	w
22,56**	3,94	vw-w	17,72	5,00	w-m	17,72	5,00	w-m
22,89	3,88	vs	18,64	4,76	vw-w	18,64	4,76	w
23,06**	3,85	w-m	22,56**	3,94	w-m	22,56	3,94	w-m
23,40	3,80	m	22,75-23,2*	3,90-3,83	vs	23,06	3,85	vs
23,82	3,73	w-m	23,40	3,80	s	23,40	3,80	s
24,23	3,67	w-m	24,17	3,68	m	24,12	3,69	m
24,70	3,60	w-m	24,70	3,60	w-m	25,06	3,55	m
25,22	3,53	m	24,92-25,37*	3,57-3,51	m	26,16	3,40	vw-w
26,51	3,36	w-m	26,32	3,38	w	26,74	3,33	w-m
29,08	3,07	w-m	26,76	3,33	w-m	28,82	3,10	w-m
35,86	2,50	vw-w	28,71-29,27*	3,11-3,05	w-m	30,12	2,96	w
45,36	2,00	w	30,13	2,96	vw-w	35,86	2,50	vw-w
45,66-47,37*	1,98-1,91	vw-w	35,86	2,50	vw-w	45,32	2,00	w
			45,34	2,00	w	45,66-47,37*	1,98-1,91	vw-w
			45,66-47,37*	1,98-1,91	vw-w			
* pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes								
** típicamente un desnivel								

En las tablas B2 y B3, el término "alta" se refiere a un 60 hasta un 95 % en masa del componente especificado, el término "media" se refiere a un 25 hasta un 70 % en masa del componente especificado y el término "baja" se refiere a un 5 hasta un 40 % en masa del componente especificado. Algunos picos pueden ser desniveles sobre picos más intensos y algunos picos pueden ser un pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes.

- 10 Después del tratamiento con ácido, tal como exposición a HNO<sub>3</sub> o H<sub>2</sub>SiF<sub>6</sub>, y en una base anhidra, la zeolita cristalina microporosa UZM-39 tiene una trama tridimensional de al menos unidades tetraédricas de AlO<sub>2</sub> y SiO<sub>2</sub> y una composición empírica en la forma tratada con ácido expresada por una fórmula empírica de



- 15 donde M1 es al menos un catión intercambiable seleccionado del grupo que consiste en metales alcalinos, metales alcalinotérreos, metales de tierras raras, ion amonio, ion hidrógeno y combinaciones de los mismos, "a" es la

relación molar de M1 a (Al + E) y varía de 0,05 a 50, "N" es el promedio de la valencia ponderado de M1 y tiene un valor de +1 a +3, E es un elemento seleccionado del grupo que consiste en galio, hierro, boro y combinaciones de los mismos, x es la fracción molar de E y varía de 0 a 1,0, y' es la relación molar de Si a (Al + E) y varía de más de 9 a casi sílice pura y z'' es la relación molar de O a (Al + E) y tiene un valor determinado por la ecuación:

$$z'' = (a \cdot N + 3 + 4 \cdot y') / 2$$

Similar al material tal como se sintetiza, los materiales UZM-39 modificados son térmicamente estables hasta una temperatura de al menos 600 °C y en otra realización, hasta al menos 800 °C y pueden tener un volumen microporos como un porcentaje del volumen de poros total de más de un 60 %.

Por sílice casi pura se entiende que casi todo el aluminio y/o los metales E se han retirado de la trama. Es bien sabido que es casi imposible retirar todo el aluminio y/o metal E. Numéricamente, una zeolita es sílice casi pura cuando y' tiene un valor de al menos 3000, preferiblemente 10 000 y mucho más preferiblemente 20 000. Por tanto, los intervalos para y' son de 9 a 3000; de más de 20 a 3000; de 9 a 10 000; de más de 20 a 10 000; de 9 a 20 000; y de más de 20 a 20 000.

A la hora de especificar las proporciones del material de partida de zeolita y las propiedades de adsorción del producto de zeolita y similares en la presente memoria, se pretende el "estado anhidro" de la zeolita salvo que se indique lo contrario. La expresión "estado anhidro" se emplea en la presente memoria para hacer referencia a una zeolita sustancialmente desprovista de agua físicamente adsorbida y también químicamente adsorbida.

La zeolita cristalina UZM-39 de esta divulgación puede usarse para separar mezclas de especies moleculares, retirar contaminantes mediante intercambio iónico y catalizar diversos procesos de conversión de hidrocarburo. La separación de especies moleculares puede estar basada en el tamaño molecular (diámetro cinético) o en el grado de polaridad de las especies moleculares.

La zeolita UZM-39 de esta divulgación también puede usarse como catalizador o soporte de catalizador en diversos procesos de conversión de hidrocarburos. Los procesos de conversión de hidrocarburos son bien conocidos en la técnica e incluyen craqueo, hidrocraqueo, alquilación de aromáticos o isoparafinas, isomerización de parafina, olefinas o polialquilbenceno tal como xileno, transalquilación de polialquilbenceno con benceno o monoalquilbenceno, desproporción de monoalquilbenceno, polimerización, regeneración, hidrogenación, deshidrogenación, transalquilación, desalquilación, hidratación, deshidratación, hidrotratamiento, hidrodeshidrogenación, hidrodeshidrosulfuración, metanación y proceso de desplazamiento de gas natural sintético. Las condiciones de reacción específicas y los tipos de suministros que pueden usarse en estos procesos se exponen en el documento US 4310440 y el documento US 4440871. Los procesos de conversión de hidrocarburos preferidos son aquellos en que el hidrógeno es un componente tal como hidrotratamiento o hidrorefinado, hidrogenación, hidrocraqueo, hidrodeshidrogenación, hidrodeshidrosulfuración, etc.

La zeolita descrita anteriormente, o una modificación de la misma, puede estar en un material compuesto con aglutinantes habitualmente conocidos. La UZM-39 se usa como un catalizador o soporte de catalizador en diversas reacciones. La UZM-39 preferiblemente se mezcla con un aglutinante para la formación conveniente de partículas de catalizador en una proporción de un 5 a un 100 % en masa de zeolita UZM-39 y de un 0 a un 95 % en masa de aglutinante, comprendiendo la zeolita UZM-39 preferiblemente de un 10 a un 90 % en masa del material compuesto. El aglutinante debe ser preferiblemente poroso, tener un área superficial de 5 a 800 m<sup>2</sup>/g y ser relativamente resistente a las condiciones utilizadas en el proceso de conversión de hidrocarburos. Ejemplos no limitantes de aglutinantes son alúmina, titania, zirconia, óxido de cinc, magnesia, boria, sílice-alúmina, sílice-magnesia, cromia-alúmina, alúmina-boria, aluminosilicatos, sílice-zirconia, sílice, gel de sílice y arcillas. Aglutinantes preferidos son sílice amorfa y alúmina, incluyendo gamma-, eta- y teta-alúmina, siendo gamma- y eta-alúmina especialmente preferidas.

La zeolita con o sin un aglutinante puede formarse en diversas formas tales como pastillas, gránulos, extruidos, esferas, etc. las formas preferidas son extruidos y esferas. Los extruidos se preparan por un medio convencional que implica mezclar la composición antes o después de añadir los componentes metálicos, con el aglutinante y un agente peptizante adecuado para formar una masa homogénea o pasta espesa que tiene el contenido de humedad correcto para permitir la formación de extruidos con integridad aceptable para resistir la calcinación directa. La masa entonces se extruye a través de un troquel para dar el extruido conformado. Una multitud de formas de extruido diferentes son posibles incluyendo, aunque sin limitación, cilindros, hoja de trébol, mancuerna y polilobulados simétricos y asimétricos. También está dentro del alcance de esta invención que los extruidos pueden conformarse adicionalmente a cualquier forma deseada, tal como esferas, por cualquier medio conocido en la técnica.

Las esferas pueden prepararse por el método de goteo en aceite bien conocido que se describe en la patente de Estados Unidos n.º 2620314. El método implica hacer gotear una mezcla de zeolita y, por ejemplo, sol de alúmina, y agente gelificante en un baño de aceite mantenido a temperaturas elevadas. Las gotas de la mezcla permanecen en el baño de aceite hasta que se sedimentan y forman esferas de hidrogel. Las esferas entonces se extraen de forma continua del baño de aceite y típicamente se someten a tratamientos de envejecimiento específicos en aceite y una disolución de amoníaco para mejorar adicionalmente sus características físicas. Las partículas envejecidas y

gelificadas resultantes entonces se lavan y se secan a una temperatura relativamente baja de 50 a 200 °C y se someten a un procedimiento de calcinación a una temperatura de 450 a 700 °C durante un periodo de 1 a 20 horas. Este tratamiento logra la conversión del hidrogeno en la matriz de alúmina correspondiente.

5 Las condiciones de hidrocrqueo típicamente incluyen una temperatura en el intervalo de 204 °C a 649 °C (400° a 1200 °F) o de 316 °C a 510 °C (600 °F y 950 °F). Las presiones de reacción están en el intervalo de atmosférica a 24 132 kPa g (3500 psig), o entre 1379 y 20 685 kPa g (200 a 3000 psig). Los tiempos de contacto habitualmente corresponden a velocidades espaciales por hora en liquido (LHSV) en el intervalo de 0,1 h<sup>-1</sup> a 15 h<sup>-1</sup>, preferiblemente entre 0,2 y 3 h<sup>-1</sup>. Las tasas de circulación de hidrógeno están en el intervalo de 178 a 8888 m<sup>3</sup> estándar/m<sup>3</sup> (1000 a 50 000 pies cúbicos estándar (scf) por barril de carga), o 355 a 5333 m<sup>3</sup> estándar/m<sup>3</sup> (2000 a 30 000 scf por barril de carga). Las condiciones de hidrotratamiento adecuadas generalmente están dentro de los intervalos amplios de condiciones de hidrocrqueo expuestos anteriormente.

10 El efluente de la zona de reacción normalmente se retira del lecho de catalizador, se somete a condensación parcial y separación de vapor-liquido y después se fracciona para recuperar los diversos componentes del mismo. El hidrógeno, y si se desea alguno o todos los materiales más pesados sin convertir, se reciclan al reactor. Como alternativa, puede emplearse un flujo de dos fases con el material sin convertir que se pasa a un segundo reactor. Los catalizadores de la presente invención pueden usarse en solamente una fase de dicho proceso o pueden usarse en ambas fases del reactor.

15 Los procesos de craqueo catalítico se realizan preferiblemente con la composición de UZM-39 usando material básicas tales como gasóleos, naftas pesadas, residuos de petróleo crudo desasfaltado, etc. siendo la gasolina el producto deseado principal. Las condiciones de temperatura de 454 °C a 593 °C (850 °F a 1100 °F), los valores LHSV de 0,5 a 10 y las condiciones de presión de 0 a 344 kPa g (0 a 50 psig) son adecuadas.

20 La alquilación de isoparafinas con olefinas para producir alquilatos adecuados como componentes de combustible de motor se realiza a temperaturas de -30° a 40 °C, presiones de atmosférica a 6895 kPa (1000 psig) y una velocidad espacial por hora en peso (WHSV) de 0,1 a 120. Pueden encontrarse detalles sobre la alquilación de parafinas en el documento US 5157196 y el documento US 5157197.

25 La alquilación de aromáticos habitualmente implica hacer reaccionar un aromático (C<sub>2</sub> a C<sub>12</sub>), especialmente benceno, con una monoolefina para producir un aromático sustituido con alquilo. El proceso se realiza a una relación de aromático:olefina (por ejemplo, benceno:olefina) entre 1:1 y 30:1, una LHSV de olefina de 0,3 a 10 h<sup>-1</sup>, una temperatura de 100° a 250 °C y presiones de 1379 kPa g a 6895 kPa g (200 a 1000 psig). Pueden encontrarse detalles adicionales sobre el aparato en el documento US 4870222.

30 La desalquilación de aromáticos habitualmente implica pasar un aromático sustituido con alquilo, especialmente etilbenceno o tolueno, sobre un material compuesto catalítico para producir una olefina y un aromático desalquilado, especialmente benceno. Típicamente, la olefina se hidrogena para producir una parafina. Las condiciones de desalquilación típicas incluyen una temperatura en el intervalo de 100° a 600 °C y presión de 10 kPa a 5 MPa. La LHSV es de 0,1 a 50 h<sup>-1</sup>. El hidrocarburo entra en contacto con el catalizador en mezcla con una corriente que contiene hidrógeno gaseoso en una línea a una relación molar de hidrógeno a hidrocarburo de 0,1:1 a 15:1 o más, y preferiblemente una relación de 0,1 a 10. Pueden encontrarse detalles adicionales sobre el aparato en el documento US 8134037.

35 La formación de metilaromáticos es un proceso alternativo para generar tolueno y xilenos a partir de benceno y una fuente de parafina que tiene al menos una parafina que tiene de 2 a 6 átomos de carbono, mencionada en la presente memoria como fuente de parafina C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>. En otra realización, puede usarse una fuente de parafina que comprende al menos una parafina que tiene de 3 a 6. Las reacciones implicadas pueden incluir craqueo, alquilación aromática y transalquilación.

40 La fuente de parafina C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub> puede incluir al menos uno de, independientemente uno o más cicloalcanos y alcanos, y puede comprender al menos un 5 % en peso del suministro. Opcionalmente, la fuente de parafina también puede incluir una o más olefinas. El cicloalcano preferiblemente tiene al menos tres, y de forma deseable cinco, átomos de carbono en el anillo. El suministro puede incluir al menos un 10 % en peso de uno o más cicloalcanos, o un 10-70 % en peso de uno o más cicloalcanos con respecto al peso del suministro. Además, el suministro puede incluir hasta un 50 % en peso de uno o más hidrocarburos C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub> con respecto al peso del suministro. Habitualmente, el suministro carece sustancialmente de agentes de metilación que contienen uno o más heteroátomos. Como ejemplo, el suministro puede tener menos de un 1 %, preferiblemente menos de un 0,1 % en peso de uno o más agentes de metilación.

45 Típicamente, el suministro puede incluir compuestos aromáticos también. Los compuestos aromáticos pueden incluir benceno, tolueno, uno o más xilenos, naftaleno, etilbenceno y uno o más aromáticos polinucleares. En una realización, se prefiere benceno. Típicamente, el suministro puede comprender un 20-95 % en peso de uno o más aromáticos, tales como benceno, con respecto al peso del suministro. En algunas otras realizaciones, el contenido de benceno del suministro puede ser de un 15-25 % en peso con respecto al peso del suministro.

50 La zona de reacción en que la fuente de parafina C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub> y compuesto aromático se hacen reaccionar sobre el

material compuesto catalítico UZM-39 puede funcionar en cualquier condición adecuada en fase líquida o gaseosa, sin embargo, se prefiere la reacción en fase gaseosa para facilitar el craqueo de alcanos C2-C6. Particularmente, la zona de reacción puede funcionar a una temperatura de 250-700 °C, preferiblemente de 350-600 °C, una presión de 100-21 000 kPa, preferiblemente de 1379-6895 kPa y una velocidad espacial por hora en peso (WHSV) de 0,1-100 h<sup>-1</sup>, preferiblemente de 2-10 h<sup>-1</sup>. El suministro también puede entrar en contacto con el catalizador en mezcla con una corriente que contiene hidrógeno gaseoso en una línea a una relación molar de hidrógeno a hidrocarburo de 0:1 a 5:1, y preferiblemente una relación de 0 a 1.

Se analizan procesos y condiciones de procesamiento adicionales donde puede emplearse el material compuesto catalítico que comprende material compuesto que ha crecido coherentemente de zeotipos TUN e IMF, en los documentos US 20110178356, US 20110178354 y US 20110174692.

En general, un proceso posterior puede utilizar uno o más productos, tales como benceno, paraxileno, metaxileno y ortoxileno, de las realizaciones divulgadas en la presente memoria. Particularmente, el paraxileno, tras la oxidación, puede producir ácido tereftálico usado en la fabricación de textiles, fibras y resinas. Además, el paraxileno puede usarse como agente de limpieza para láminas y virutas de acero y silicio, un plaguicida, un diluyente para pintura, y en pinturas y barnices. El metaxileno puede usarse como intermedio para fabricar plastificantes, tintes azo, conservantes de la madera y otros productos de este tipo. El ortoxileno puede ser una materia básica para la producción de anhídrido ftálico. Adicionalmente los xilenos en general pueden usarse como disolvente en la industria de pintura, caucho y cuero. Además, los grupos metilo en los xilenos pueden clorarse para su uso como diluyentes de laca. El benceno puede usarse como suministro para generar ciclohexano, que a su vez puede usarse para generar nailon. Además, el benceno puede usarse como intermedio para generar estireno, etilbenceno, cumeno y ciclohexano entre otros productos.

Los siguientes ejemplos se presentan en ilustración de esta invención y no están pretendidos como limitaciones excesivas del alcance generalmente amplio de la invención expuesto en las reivindicaciones anejas.

La estructura de la zeolita UZM-39 de esta invención se determinó por análisis de rayos X. Los patrones de rayos X presentados en los siguientes ejemplos se obtuvieron usando técnicas convencionales de difracción de polvo de rayos X. La fuente radiación era un tubo de rayos X de alta intensidad que funciona a 45 kV y 35 ma. El patrón de difracción de la radiación de cobre K-alfa, se obtuvo por técnicas basadas en ordenador apropiadas. Las muestras de polvo comprimidas planas se examinaron de forma continua a 2° a 56° (2θ). Los espaciados interplanares (d) en unidades de ángstrom se obtuvieron desde la posición de los picos de difracción expresados como θ donde θ es el ángulo de Bragg observado desde los datos digitalizados. Las intensidades se determinaron a partir del área integrada de picos de difracción después de restar el fondo, siendo "I<sub>o</sub>" la intensidad de la línea o pico más fuerte, y siendo "I" la intensidad de cada uno de los otros picos.

Como entenderán los expertos en la materia, la determinación del parámetro 2θ está sometido a error humano y mecánico, que en combinación puede forzar una inexactitud de ± 0,4° en cada valor presentado de 2θ. Esta inexactitud, por supuesto, también se manifiesta en los valores presentados de los espaciados-d, que se calculan a partir de los valores 2θ. Esta imprecisión es general en toda la técnica y no es suficiente para imposibilitar la diferenciación de los presentes materiales cristalinos entre sí y de las composiciones de la técnica anterior. En algunos de los patrones de rayos X presentados, las intensidades relativas de los espaciados-d se indican por las anotaciones vs, s, m y w que representan muy fuerte, fuerte, medio y débil, respectivamente. En términos de 100 x I/I<sub>o</sub>, las denominaciones anteriores se definen como:

$$vw = <5; w = 6-15; m = 16-50; s = 51-80; y vs = 80-100$$

en determinados casos, la pureza de un producto sintetizado puede evaluarse con referencia a su patrón de difracción de polvo de rayos X. Por tanto, por ejemplo, si una muestra se indica pura, se pretende que únicamente el patrón de rayos X de la muestra esté libre de líneas atribuibles a impurezas cristalinas, no que no haya materiales amorfos presentes.

Para ilustrar más completamente la invención, se exponen los siguientes ejemplos. Debe entenderse que los ejemplos son únicamente a modo de ilustración y no se pretenden como limitación excesiva del amplio alcance de la invención expuesta en las reivindicaciones anejas.

#### Ejemplo 1

Una muestra de UZM-39 se preparó de la siguiente manera. Se disolvieron 6,02 g de NaOH, (97 %) en 125,49 g de agua. Se añadieron 0,62 g de Al(OH)<sub>3</sub>, (29,32 % en peso de Al) a la disolución de NaOH para formar una primera disolución. Por separado, se agitaron 0,24 g del material estratificado UZM-8 en 30,0 g de Ludox AS-40 para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 6,54 g de 1,4-dibromobutano, (99 % en peso) con 7,65 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) para formar una tercera disolución. La tercera disolución se añadió a la mezcla enfriada de la primera y segunda disolución para formar la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc y se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD como se muestra en la figura 1. Los

resultados analíticos muestran que este material tiene las siguientes relaciones molares: Si/Al de 12,64, Na/Al de 0,116, N/Al de 0,92, C/N de 7,23.

5 La microscopía electrónica de barrido (SEM) reveló cristales de morfología de varilla cuadrada con intercrecimiento en forma de estrellas, de 250 a 700 nm a lo largo de una cara del cuadrado con una relación de aspecto de 2:1 a 5:1. La micrografía se muestra en la figura 7. El producto se calcinó a 550 °C durante 3 h en aire. El patrón de XRD del material calcinado se muestra en la figura 2.

#### Ejemplo comparativo 2

10 Se siguió la preparación del ejemplo 1, excepto que no se añadió el material estratificado UZM-8 a la segunda disolución. Después de 144 horas de agitación a 100 r.p.m. a 160 °C, el producto se aisló por filtración. El producto se identificó como analcima por XRD.

#### Ejemplo comparativo 3

15 Se disolvieron 6,68 g de NaOH, (97 %) en 145,44 g de agua. Se añadieron 2,86 g de  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  (97 %) a la disolución de hidróxido de sodio. Se agitaron 13,33 g de Aerosil 200 en la mezcla. Se añadieron 13,1 g de  $\text{H}_2\text{O}$ . Se añadieron 7,26 g de 1,4-dibromobutano, (99 %) y 5,84 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) y la mezcla se agitó vigorosamente durante un día. La mezcla se dividió en partes iguales y se cargó en ocho recipientes Parr de 45 cc y se colocaron en un horno rostizador a 160°. La mezcla en uno de los recipientes Parr produjo un material a las 256 horas identificado por XRD que tiene la estructura TUN. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 15,51, Na/Al de 0,12, N/Al de 1,29 y C/N de 6,89. El análisis de SEM reveló una morfología de grupos de varillas muy gruesas, de 300-800 nm de longitud y con una relación de aspecto de 1.

20 El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75° seguido de calcinación a 500° en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ .

25 El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada mostró un 39,2 % en peso de Si, un 2,34 % en peso de Al, <0,005 % en peso de Na con un área superficial de BET de 378  $\text{m}^2/\text{g}$ , volumen de poros de 0,220  $\text{cm}^3/\text{g}$  y volumen de microporos de 0,190  $\text{cm}^3/\text{g}$ .

El análisis de la forma  $\text{H}^+$  de este material por refinado de XRD de Rietveld mostró que el material consistía completamente del tipo de estructura TUN. El análisis TEM confirmó que no se había producido crecimiento coherente de cristales IMF.

#### 30 Ejemplo 4

Se disolvieron 6,40 g de NaOH, (97 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,16 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio para crear una primera disolución. Por separado, se agitaron 0,30 g del material estratificado (UZM-8) en 37,5 g de Ludox AS-40 para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 % en peso) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) para formar una tercera disolución. La tercera disolución se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,07, Na/Al de 0,124, N/Al de 0,90, C/N de 6,85.

#### Ejemplo 5

45 Se disolvieron 7,19 g de NaOH, (99 % en peso) en 90,1 g de agua. Se añadieron 1,56 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio para crear una primera disolución. Por separado, se agitaron 0,405 g del material estratificado (UZM-8) en 50,62 g de Ludox AS-40 para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 11,04 g de 1,4-dibromobutano, (99 % en peso) con 12,90 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) para formar una tercera disolución. La tercera disolución se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente durante 5 minutos y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 100 r.p.m. Se aislaron 16,5 g del producto por filtración. El producto se identificó por XRD como UZM-39 con una impureza de MOR muy ligera. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 14,14, Na/Al de 0,16, N/Al de 1,02, C/N de 7,33.

#### Ejemplo 6

Se disolvieron 37,62 g de NaOH, (97 % en peso) en 600 g de agua para crear una disolución de hidróxido de sodio.

Se añadieron 6,96 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,32 % en masa de Al), a la disolución de hidróxido de sodio para crear una primera disolución. Por separado, se agitaron 1,80 g del material estratificado (UZM-8) en 225 g de Ludox AS-40 para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 49,08 g de 1,4-dibromobutano, (99 % en peso) con 57,36 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) durante 1-5 minutos para formar una tercera disolución. La tercera disolución se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente durante 5 minutos y se transfirió a un autoclave agitado de 2 l. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 250 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó por XRD como UZM-39. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 11,62, Na/Al de 0,12, N/Al de 0,88 C/N de 7,36.

El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ . El análisis de la forma  $\text{H}^+$  de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

#### 15 Ejemplo 7

Se disolvieron 505,68 g de NaOH, (99 % en peso) en 10 542 g de agua. Se añadieron 52,08 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,3 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio para crear una primera disolución. Por separado, se agitaron 20,16 g del material estratificado (UZM-8) en 2520 g de Ludox AS-40 para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 549,36 g de 1,4-dibromobutano, (99 % en peso) con 642,6 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) durante 3-5 minutos para formar una tercera disolución. La tercera disolución se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente durante 5 minutos y se bombeó en un autoclave agitado de 18,92 l (5 galones). La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 150 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó por XRD como UZM-39. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 13,35, Na/Al de 0,087, N/Al de 0,96 C/N de 7,12.

#### Ejemplo 8

Se siguió la preparación del ejemplo 4 excepto que se reemplazó UZM-8 con 0,30 g de UZM-26. El producto se identificó por XRD como UZM-39. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares: Si/Al de 12,88, Na/Al de 0,25, N/Al de 0,88 C/N de 7,31.

#### Ejemplo 9

Se disolvieron 6,27 g de NaOH, (99 %) en 111,88 g de agua para crear una disolución de hidróxido de sodio. Se añadieron 1,16 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,32 % en masa de Al), a la disolución de hidróxido de sodio para crear una primera disolución. Se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40 y después 0,22 g del material estratificado UZM-5 a la primera disolución. La primera disolución se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La primera disolución se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 %) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) durante 1-5 minutos para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente durante 5 minutos y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó por XRD como UZM-39 con un contaminante EUO o NES muy pequeño.

#### Ejemplo comparativo 10

Este ejemplo es idéntico al ejemplo 4 excepto que se reemplazó UZM-8 con 0,30 g de UZM-39. El producto se identificó como una composición que comprende MTW, UZM-39, ANA y MOR.

#### 45 Ejemplo 11

Se disolvieron 6,27 g de NaOH, (97 % en peso) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,16 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio para crear una primera disolución. Por separado, se agitaron 0,30 g del material estratificado (UZM-8) en 37,5 g de Ludox AS-40 para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 12,27 g de 1,4-dibromobutano, (99 % en peso) con 14,34 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) para formar una tercera disolución. La tercera disolución se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 con una impureza de ESV por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 13,17, Na/Al de 0,126, N/Al de 1,03, C/N de 7,22.

## Ejemplo 12

Se siguió el procedimiento del ejemplo 4 excepto que se remplazaron 9,56 g de 1-metilpirrolidina (97 % en peso) con 8,05 g de dimetiletilamina (97 % en peso). El producto se identificó como una composición que comprende mordenita y UZM-39.

## 5 Ejemplo 13

Se disolvieron 6,27 g de NaOH, (99 % en peso) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,16 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio para crear una primera disolución. Se añadieron 0,30 g del material estratificado UZM-39 y 37,5 g de Ludox AS-40 a la primera disolución. La primera disolución se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La primera disolución se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 4,02 g de dimetiletilamina, (97 % en peso) con 4,78 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) durante 1-2 minutos para formar una disolución de amina. Se añadieron 8,18 g de 1,4-dibromobutano (99 % en peso) a la disolución de amina y después se mezcló durante 1-2 minutos para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente durante 5 minutos y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 192 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al = 12,42 Na/Al = 0,175, N/Al = 0,91, C/N = 6,92.

El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ . El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra 38,7 % de Si, 2,97 % de Al, 0,0089 % de Na con un área superficial de BET de 375 m<sup>2</sup>/g, un volumen de poros de 0,238 cm<sup>3</sup>/g y un volumen microporos de 0,184 cm<sup>3</sup>/g. El análisis de la forma  $\text{H}^+$  de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

## Ejemplo 14

Se disolvieron 6,21 g de NaOH, (99 %) en 111,88 g de agua para crear una disolución de hidróxido de sodio. Se añadieron 1,16 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio para crear una primera disolución. Se añadieron 0,30 g del material estratificado (UZM-8) y 37,5 g de Ludox AS-40 a la primera disolución. La primera disolución se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La primera disolución se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 % en peso) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) durante 1-5 minutos para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente durante 5 minutos y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 170 °C durante 96 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,76 Na/Al de 0,116, N/Al de 0,94, C/N de 6,98.

## Ejemplo 15

Se disolvieron 6,21 g de NaOH, (99 %) en 111,88 g de agua para crear una disolución de hidróxido de sodio. Se añadieron 1,16 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio para crear una primera disolución. Se añadieron 0,30 g del material estratificado (UZM-8) y 37,5 g de Ludox AS-40 a la primera disolución. La primera disolución se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La primera disolución se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 % en peso) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) durante 1-5 minutos para formar una segunda disolución. La segunda disolución se añadió a la primera disolución enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente durante 5 minutos y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 175 °C durante 44 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,97 Na/Al de 0,20, N/Al de 0,95, C/N de 6,98.

## Ejemplo 16

Se disolvieron 5,96 g de NaOH, (97 %) y 0,25 g de KOH (86 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,22 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (27,9 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40 y después 0,30 g del material estratificado UZM-8 a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 %) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) para formar una tercera mezcla. La tercera mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. El patrón de difracción de rayos X se muestra en la figura 3. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 11,69 Na/Al de 0,137, K/Al de 0,024, N/Al de 0,848, C/N de 7,16.

El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ . El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 39,4 % de Si, un 3,23 % de Al, un 0,011 % de Na, un 0,005 % de K con un área superficial de BET de 362 m<sup>2</sup>/g, un volumen de poros de 0.231 cm<sup>3</sup>/g y un volumen de microporos de 0,176 cm<sup>3</sup>/g. El patrón de difracción de rayos X se muestra en la figura 4.

## Ejemplo 17

Se disolvieron 5,96 g de NaOH, (99 %) y 0,50 g de KOH (86 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,16 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40 y después 0,30 g del material estratificado UZM-8 a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 4,09 g de 1,4-dibromobutano, (99 %) con 11,15 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) para formar una tercera mezcla. La tercera mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 11,98 Na/Al de 0,114, K/Al de 0,0375, N/Al de 0,84, C/N de 7,50.

El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ . El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 37,7 % de Si, un 3,01 % de Al, un 0,012 % de Na, un 0,006 % de K. El análisis de la forma  $\text{H}^+$  de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1. El análisis de TEM mostró que UZM-39 es una estructura compuesta que ha crecido coherentemente de zeotipos TUN e IMF, cuyos resultados del análisis se muestran en las figuras 10 y 11.

## Ejemplo 18

Se disolvieron 5,64 g de NaOH, (97 %) y 1,00 g de KOH (86 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,22 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (27,9 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40 y después 0,30 g del material estratificado UZM-8 a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 %) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) para formar una tercera mezcla. La tercera mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 11,29 Na/Al de 0,078, K/Al de 0,053, N/Al de 0,88, C/N de 6,92. La imagen de SEM del producto se muestra en la figura 8.

El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ . El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 42,6 % de Si, un 3,65 % de Al, un 0,018% de Na, un 0,02 % de K con un área superficial de BET de 351 m<sup>2</sup>/g, un volumen de poros de 0.218 cm<sup>3</sup>/g y un volumen de microporos de 0,170 cm<sup>3</sup>/g. El análisis de la forma  $\text{H}^+$  de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

## Ejemplo 19

Se disolvieron 5,02 g de NaOH, (97 %) y 2,00 g de KOH (86 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,22 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (27,9 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40 y después 0,30 g del material estratificado UZM-8 a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 %) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) para formar una tercera mezcla. La tercera mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 136 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD con una cantidad probablemente pequeña de contaminante NES. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 10,99, Na/Al de 0,088, K/Al de 0,11, N/Al de 0,84, C/N de 7,36.

## Ejemplo 20

Se disolvieron 5,96 g de NaOH, (99 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,22 g de  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , (27,9 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Después se añadieron 0,24 g de  $\text{Mg}(\text{OH})_2$  (95 %), 37,5 g de Ludox AS-40 y 0,30 g del material estratificado UZM-8 en el orden enumerado a la primera disolución y se agitó durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 %) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) y se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de

reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 144 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,12, Na/Al de 0,148, Mg/Al de 0,38, N/Al de 0,91, C/N de 6,96.

- 5 El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ . El análisis para la muestra de intercambio iónico calcinada muestra un 39,6 % de Si, un 2,99 % de Al, 83 ppm de Na, un 0,14 % de Mg con un área superficial de BET de 351 m<sup>2</sup>/g, un volumen de poros de 0.218 cm<sup>3</sup>/g y un volumen de microporos de 0,170 cm<sup>3</sup>/g.

#### 10 Ejemplo 21

Se disolvieron 5,96 g de NaOH, (99 %) y 0,51 g de La(OH)<sub>3</sub>, (99,9 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,16 g de Al(OH)<sub>3</sub>, (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40 y después 0,30 g del material estratificado UZM-8 a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 %) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) y se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 168 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,22 Na/Al de 0,20, La/Al de 0,18, N/Al de 0,89, C/N de 7,13.

- 15 20 El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ . El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 39,1 % de Si, un 3,06 % de Al, 60 ppm de Na, un 0,25 % de La con un área superficial de BET de 335 m<sup>2</sup>/g, un volumen de poros de 0.226 cm<sup>3</sup>/g y un volumen de microporos de 0,163 cm<sup>3</sup>/g.

#### 25 Ejemplo 22

Se disolvieron 3,14 g de NaOH, (97 %) en 106,41 g de agua. Se añadieron 1,16 g de Al(OH)<sub>3</sub>, (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40 y después 0,30 g del material estratificado UZM-8 a la primera disolución. A continuación, se añaden 26,7 g de disolución de silicato de Na (13,2 % en peso de Si; 6,76 % en peso de Na) a lo anterior y se agita vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,18 g de 1,4-dibromobutano, (99 %) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) para formar una tercera mezcla. La tercera mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 224 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material

- 30 35 40 El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico tres veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ . El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 38,8 % de Si, un 3,05 % de Al, 0,011 % de Na, con un área superficial de BET de 364 m<sup>2</sup>/g, un volumen de poros de 0.273 cm<sup>3</sup>/g y un volumen de microporos de 0,174 cm<sup>3</sup>/g. El análisis de la forma  $\text{H}^+$  de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

#### Ejemplo 23

Se disolvieron 5,33 g de NaOH, (99 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,16 g de Al(OH)<sub>3</sub>, (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Por separado, se agitaron 0,30 g de zeolita beta en 37,5 g de Ludox AS-40 para generar una segunda mezcla. Esta segunda mezcla se añadió a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 8,89 g de 1,5-dibromopentano, (97 %) con 9,56 g de 1-metilpirrolidina, (97 %) para formar una tercera mezcla. La tercera mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 256 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 13,24 Na/Al de 0,13, N/Al de 0,91, C/N de 7,21.

- 50 55 El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico tres veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir  $\text{NH}_4^+$  en  $\text{H}^+$ . El análisis de la forma  $\text{H}^+$  de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

#### Ejemplo comparativo 24

Se añadieron 10,8 g de Aerosil 200, mientras se agitaba, a una disolución de 12,24 g de dibromuro de 1,5-bis(N-metilpirrolidinio)pentano en 114 g de H<sub>2</sub>O. Se formó un gel muy espeso. Por separado, se generó una disolución de 60 g de H<sub>2</sub>O, 3,69 g de NaOH (99 %), 0,95 g de aluminato de sodio (26,1 % de Al por análisis) y 1,86 g de NaBr (99 %). Esta segunda disolución se añadió a la mezcla anterior que se diluye un poco. La mezcla se dividió en partes iguales entre 7 recipientes Parr de 45 cc. Un recipiente, que se digirió durante 12 días a 170 °C en un horno tostador a 15 r.p.m., produce un producto que se determinó por XRD con la estructura IMF. El producto se aisló por filtración. El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de una calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en H<sup>+</sup>. El análisis de la forma H<sup>+</sup> de este material por refinado de XRD de Rietveld mostró que el material consistía completamente en el tipo de estructura IMF. El análisis de TEM confirmó que no se producía crecimiento coherente de cristales TUN.

## Ejemplo 25

Se disolvieron 31,98 g de NaOH, (99 %) en 671,3 g de agua. Se añadieron 6,96 g de Al(OH)<sub>3</sub>, (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Por separado, se agitaron 1,80 g del material estratificado UZM-8 en 225,0 g de Ludox AS-40 para generar una segunda mezcla. La segunda mezcla se añadió a la primera disolución y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 53,34 g de 1,5-dibromopentano, (97 % en peso) con 57,36 g de 1-metilpirrolidina, (97 % en peso) para formar una tercera mezcla. La tercera mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 2 l. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 256 horas con agitación a 250 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,30, Na/Al de 0,13, N/Al de 0,92, C/N de 7,51.

El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico tres veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en H<sup>+</sup>. El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 39,0 % de Si, un 2,93 % de Al, un 0,008 % de Na. El análisis de la forma H<sup>+</sup> de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

## Ejemplo 26

Se disolvieron 5,76 g de NaOH, (97 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,22 g de Al(OH)<sub>3</sub>, (27,9 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Cuando esto se convirtió en una disolución, se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40. A continuación, se añadieron 0,30 g del material estratificado UZM-8. La mezcla se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 0,89 g de 1,5-dibromopentano, (97 %) con 7,36 g de 1,4-dibromobutano, (99 %), después se añadieron 9,56 g de 1-metilpirrolidina (97 %) para formar una segunda mezcla. La segunda mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 176 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,15, Na/Al de 0,15, N/Al de 0,90, C/N de 7,59.

El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en H<sup>+</sup>. El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 38,6 % de Si, un 2,85 % de Al, <0,01 % de Na. El análisis de la forma H<sup>+</sup> de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

## Ejemplo 27

Se disolvieron 5,76 g de NaOH, (97 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,22 g de Al(OH)<sub>3</sub>, (27,9 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Cuando esto se convirtió en una disolución, se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40. A continuación, se añadieron 0,30 g del material estratificado UZM-8 y la mezcla se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 1,78 g de 1,5-dibromopentano, (97 %) con 6,54 g de 1,4-dibromobutano, (99 %), después se añadieron 9,56 g de 1-metilpirrolidina (97 %) para formar una segunda mezcla. La segunda mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 176 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,24, Na/Al de 0,107, N/Al de 0,93, C/N de 6,91.

El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°C, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en H<sup>+</sup>. El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 38,7 % de Si, un 2,98 % de Al, 158 ppm de Na con un área superficial de BET de 333 m<sup>2</sup>/g, un

volumen de poros de 0.201 cm<sup>3</sup>/g y un volumen de microporos de 0,164 cm<sup>3</sup>/g. El análisis de la forma H<sup>+</sup> de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

Ejemplo 28

5 Se disolvieron 5,76 g de NaOH, (97 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,22 g de Al(OH)<sub>3</sub>, (27,9 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Cuando esto se convirtió en una disolución, se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40. A continuación, se añadieron 0,30 g del material estratificado UZM-8 y la mezcla se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 2,67 g de 1,5-dibromopentano, (97 %) con 5,73 g de 1,4-dibromobutano, (99 %), después se añadieron 9,56 g de 1-metilpirrolidina (97 %) para formar una segunda mezcla. La segunda mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 176 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. El patrón de difracción de rayos X se muestra en la figura 5. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,15, Na/Al de 0,108, N/Al de 0,86, C/N de 7,68.

15 El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en H<sup>+</sup>. El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 38,7 % de Si, un 2,98 % de Al, 79 ppm de Na. El patrón de difracción de rayos X se muestra en la figura 6. El análisis de la forma H<sup>+</sup> de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

Ejemplo 29

25 Se disolvieron 5,80 g de NaOH, (97 %) en 111,88 g de agua. Se añadieron 1,16 g de Al(OH)<sub>3</sub>, (29,32 % en peso de Al), a la disolución de hidróxido de sodio. Cuando esto se convirtió en una disolución, se añadieron 37,5 g de Ludox AS-40. A continuación, se añadieron 0,30 g del material estratificado UZM-8 y la mezcla se agitó vigorosamente durante 1-2 horas. La mezcla se enfrió hasta 0 °C-4 °C. Por separado, se mezclaron 4,45 g de 1,5-dibromopentano, (97 %) con 4,09 g de 1,4-dibromobutano, (99 %), después se añadieron 9,56 g de 1-metilpirrolidina (97 %) para formar una segunda mezcla. La segunda mezcla se añadió a la mezcla enfriada para crear la mezcla de reacción final. La mezcla de reacción final se agitó vigorosamente y se transfirió a un autoclave agitado de 300 cc. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 224 horas con agitación a 100 r.p.m. El producto se aisló por filtración. El producto se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 11,75, Na/Al de 0,13, N/Al de 0,86, C/N de 7,59.

35 El producto generado mediante esta síntesis se calcinó en flujo de aire a 600° durante 6 horas. Después se sometió a intercambio iónico cuatro veces con disolución de nitrato de amonio 1 M a 75°, seguido de calcinación a 500 °C en aire durante 2 horas para convertir NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en H<sup>+</sup>. El análisis para la muestra sometida a intercambio iónico calcinada muestra un 40,1 % de Si, un 3,32 % de Al, 90 ppm de Na con un área superficial de BET de 305 m<sup>2</sup>/g, un volumen de poros de 0.224 cm<sup>3</sup>/g y un volumen de microporos de 0,146 cm<sup>3</sup>/g. El análisis de la forma H<sup>+</sup> de este material por refinado de XRD de Rietveld dio los resultados mostrados en la tabla 1.

Tabla 1

Ejemplo n.º	% de TUN	% de IMF
3	100	0
6	95	5
13	83	17
17	46	54
18	36,5	63,5
23	24	76
24	0	100
25	19	81
26	58	42
27	30	70
28	13	87
29	8	92

Ejemplo 30

40 Para determinar las cantidades de estructura TUN e IMF que puedan detectarse en un material de estructura compuesta que ha crecido coherentemente UZM-39, se realizó un estudio del límite de detección. Se creó electrónicamente una serie de patrones de difracción simulados a partir de los patrones de difracción observados de las formas H<sup>+</sup> los productos del ejemplo 3 y el ejemplo 24 usando el programa informático de análisis JADE XRD (disponible en Materials Data Incorporated). Los niveles de mezcla variaron de un 1 % a un 99 % de TUN y se

crearon graduando el constituyente de porcentaje más pequeño hasta el nivel requerido, añadiendo los patrones y guardando el patrón compuesto.

5 El análisis de Rietveld pudo cuantificar el nivel de IMF en la estructura compuesta que ha crecido coherentemente UZM-39 a un 10 % o nivel mayor, sin embargo, visualmente, pueden determinarse porcentajes pequeños de IMF en las muestras (figura 12) que consisten en gran medida en TUN al nivel de un 5 % o mayor a partir de la intensidad del pico a un espaciado-d de 9,46Å, mientras que a niveles mayores, puede hacerse un seguimiento de los picos tal como el aumento en el pico a un espaciado-d de 11,4Å entre otros. En la figura 12, el espectro 1 es un 1 % de IMF, un 99 % de TUN; el espectro 2 es un 3 % de IMF, un 97 % de TUN; el espectro 3 es un 5 % de IMF, un 95 % de TUN; y el espectro 4 es un 10 % de IMF, un 90 % de TUN.

10 El análisis de Rietveld pudo cuantificar el nivel de TUN en la estructura compuesta que ha crecido coherentemente UZM-39 a un 10 % o nivel mayor, sin embargo, la figura 13 muestra que, visualmente, pueden observarse porcentajes pequeños de TUN en muestras que consisten en gran medida en IMF al nivel de un 5 % o mayor a partir de la intensidad del pico a un espaciado-d de 12,25Å, mientras que a niveles mayores, puede hacerse seguimiento de otros picos tal como el aumento en el pico a un espaciado-d de 9,63Å en otros. En la figura 13, el espectro 1 es un 1 % de TUN, un 99 % de IMF; el espectro 2 es un 3 % de TUN, un 97 % de IMF; el espectro 3 es un 5 % de TUN, un 95 % de IMF; y el espectro 4 es un 10 % de TUN, un 90 % de IMF.

#### Ejemplo 31

20 Se disolvieron 44,9 g de NaOH, (97 %) en 1122,3 g de agua. A esta disolución se le añadió 10,8 g de aluminato de sodio líquido (22,9 % de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 20,2 % de  $\text{Na}_2\text{O}$ ), seguido de 105,9 g de Ultrasil VN3 (90 % de  $\text{SiO}_2$ , disponible en Evonik) para formar una primera mezcla. Por separado, se combinaron 53,5 g de 1,4-dibromobutano, (99 %), con 62,6 g de 1-metilpirrolidina (97 %) para formar una segunda mezcla. La segunda mezcla se añadió a la primera mezcla para crear la mezcla de reacción final. Finalmente, se añadió 1 g del material estratificado UZM-8 y la mezcla se agitó vigorosamente durante 1-2 horas antes de transferirla a un autoclave agitado de 2 l. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 7 días mientras se agitaba a 200 r.p.m. El producto se aisló por filtración y se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 12,40, Na/Al de 0,21, N/Al de 1,10, C/N de 7,06.

#### Ejemplo 32

30 Se combinaron NaOH,  $\text{Al}(\text{OH})_3$ ,  $\text{Ga}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , Ludox AS-40, 1,4-dibromobutano, 1-metilpirrolidina, agua y material estratificado UZM-8 para formar una mezcla de composición 0,5  $\text{Al}_2\text{O}_3$  : 0,5  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  : 65,4  $\text{SiO}_2$  : 24,6  $\text{Na}_2\text{O}$  : 9,9  $\text{C}_4\text{Br}_2$  : 29,4 1-MP : 2636  $\text{H}_2\text{O}$  y se agitó vigorosamente durante 1-2 horas antes de transferirla a un autoclave agitado de 2 l. La mezcla de reacción final se digirió a 160 °C durante 150 horas mientras se agitaba a 250 r.p.m. El producto se aisló por filtración y se identificó como UZM-39 por XRD. Los resultados analíticos mostraron que este material tiene las siguientes relaciones molares, Si/Al de 21,61, Si/Ga de 31,35, Si/(Al+Ga) de 12,79, Na/(Al+Ga) de 0,10, N/(Al+Ga) de 0,91, C/N de 7,39.

#### Ejemplo 33

40 Una UZM-39 que contenía una alta cantidad de TUN y baja cantidad de IMF en la forma  $\text{H}^+$  se cargó en un vaporizador vertical. La UZM-39 se expuso a un 100 % de vapor a 725 °C durante 12 horas o 24 horas. La UZM-39 de partida tenía un área superficial de BET de 385  $\text{m}^2/\text{g}$ , un volumen de poros de 0,248  $\text{cm}^3/\text{g}$  y un volumen de microporos de 0,180  $\text{cm}^3/\text{g}$ . Después 12 horas de vaporización, la UZM-39 aún se identificaba como UZM-39 por XRD aunque la intensidad de los primeros 5 picos había aumentado a fuerte, fuerte, muy fuerte, fuerte y media, respectivamente. Todos los otros picos estaban en posiciones e intensidades descritas en la tabla B. El material tenía área superficial de BET de 331  $\text{m}^2/\text{g}$ , un volumen de poros de 0,243  $\text{cm}^3/\text{g}$  y un volumen de microporos de 0,151  $\text{cm}^3/\text{g}$ . Después 24 horas de vaporización, la UZM-39 aún se identificaba como UZM-39 por XRD aunque la intensidad de los primeros 5 picos había aumentado a media-fuerte, fuerte, fuerte, media-fuerte y media, respectivamente. Todos los otros picos estaban en posiciones e intensidades descritos en la tabla B. El material tenía área superficial de BET de 327  $\text{m}^2/\text{g}$ , un volumen de poros de 0,241  $\text{cm}^3/\text{g}$  y un volumen de microporos de 0,150  $\text{cm}^3/\text{g}$ .

#### Ejemplo 34

50 Una UZM-39 que contenía una alta cantidad de TUN y una baja cantidad de IMF en la forma  $\text{H}^+$  se puso en un matraz de fondo redondo que contenía  $\text{HNO}_3$  6 N y se equipó con un condensador y un agitador. La mezcla que contenía UZM-39 y  $\text{HNO}_3$  se hirvió a reflujo durante 8 o 16 h. El material resultante se filtró, se lavó y se secó. El análisis de XRD mostró que el material era UZM-39, coherente con la tabla B.

#### Ejemplo 35

55 El producto generado mediante la síntesis descrita en el ejemplo 1 se unió con  $\text{SiO}_2$  en una relación molar de 75:25 combinando 6,71 g de Ludox AS-40, 8,31 g de UZM-39 y 10,79 g de agua. Esta mezcla entonces se evaporó mientras se agitaba para formar la UZM-39/ $\text{SiO}_2$  unida. El material unido entonces se calcinó usando una rampa de

2 °C/minuto hasta 550 °C, manteniéndolo durante 3 horas y después enfriando hasta temperatura ambiente. Se aisló la fracción de malla 20 a 60 y después se usó como el material compuesto catalítico en una reacción química para formar etilbenceno y xilenos.

- 5 Se suministraron benceno y propano a una relación molar de 2:1 en un reactor a 2,83 MPa (410 psig) junto con una corriente de hidrógeno de modo que la relación molar de hidrógeno a hidrocarburo fuera 3,5. Después se establecieron múltiples condiciones empezando a 425 °C y 1,8 LHSV (tabla 2 y tabla 3 columna 1) y continuando hasta 485 °C y 1,8 LSVH (tabla 2 y tabla 3 columna 2); continuando de nuevo hasta 535 °C y 1,8 LHSV (tabla 2 y tabla 3 columna 3); continuando de nuevo hasta 535 °C y 3 LHSV (tabla 2 y tabla 3 columna 4); y finalmente continuando hasta 575 °C y 3 LHSV (tabla 2 y tabla 3 columna 5). La tabla 2 muestra el porcentaje de conversión de benceno y propano en otros compuestos. La tabla 3 muestra la producción de tolueno aromático C8 más calculada multiplicando la selectividad por el producto con conversión de benceno.
- 10

Tabla 2

Porcentaje de conversión	Columna 1	Columna 2	Columna 3	Columna 4	Columna 5
Benceno	7,43	16,15	26,19	22,90	26,79
Propano	57,58	61,58	81,35	68,79	86,50

Tabla 3

Producción	Columna 1	Columna 2	Columna 3	Columna 4	Columna 5
Tolueno aromático C8 más	1,9	4,9	14,7	12,5	13,4

- 15 El experimento se repitió usando catalizador MFI unido como ejemplo comparativo. El proceso de la invención mostró 2-3 veces la selectividad por aromáticos C8 en comparación con los resultados cuando se usaba MFI unido. Además, el proceso de la invención provocaba muy poca formación de ciclohexano que aumenta, a su vez, la pureza de un corte de benceno potencial.

## REIVINDICACIONES

1. Un proceso de alquilación aromática que comprende poner en contacto un suministro que comprende al menos un primer aromático con un material compuesto catalítico zeolítico cristalino microporoso en condiciones de conversión de hidrocarburos para producir al menos un segundo aromático, seleccionado el material compuesto catalítico del grupo que consiste en:

(a) un primer material compuesto catalítico que comprende material compuesto que ha crecido coherentemente de zeotipos TUN e IMF que tiene una trama tridimensional de al menos unidades tetraédricas de  $\text{AlO}_2$  y  $\text{SiO}_2$  y una composición empírica en la base sintetizada y anhidra expresada por una fórmula empírica de:

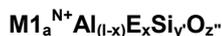


donde "n" es la relación molar de Na a (Al + E) y tiene un valor de 0,05 a 0,5, M representa al menos un metal seleccionado del grupo que consiste en cinc, grupo 1 (IUPAC 1), grupo 2 (IUPAC 2), grupo 3 (IUPAC 3) y la serie de lantánidos de la tabla periódica, y cualquier combinación de los mismos, "m" es la relación molar de M a (Al + E) y tiene un valor de 0 a 0,5, "k" es el promedio de carga del metal o metales M, T es el agente o agentes de dirección estructural orgánicos derivados de reactivos R y Q donde R es un alcano sustituido con A,Q-dihalógeno que tiene de 3 a 6 átomos de carbono y Q es al menos una monoamina neutra que tiene 6 o menos átomos de carbono, "t" es la relación molar de N del agente o agentes de dirección estructural orgánicos respecto a (Al + E) y tiene un valor de 0,5 a 1,5, E es un elemento seleccionado del grupo que consiste en galio, hierro, boro y combinaciones de los mismos, "x" es la fracción molar de E y tiene un valor de 0 a 1,0, "y" es la relación molar de Si a (Al + E) y varía de más de 9 a 25 y "z" es la relación molar de O a (Al + E) y tiene un valor determinado por la ecuación:

$$z = (n + k \cdot m + 3 + 4 \cdot y)/2$$

y se caracteriza por que tiene regiones TUN y regiones IMF que están alineadas coherentemente de modo que el eje de la zona  $[010]_{\text{TUN}}$  y el eje de la zona  $[001]_{\text{IMF}}$  son paralelos entre sí y hay continuidad de los planos cristalinos del tipo  $(002)_{\text{TUN}}$  y  $(060)_{\text{IMF}}$ , donde la indización se refiere a celdas de unidad  $C_{2/m}$  monoclinica y  $C_{mcm}$  ortorrómbica para TUN e IMF, respectivamente;

(b) un segundo material compuesto catalizador que comprende material compuesto que ha crecido coherentemente de zeotipos TUN e IMF que tiene una trama tridimensional de al menos unidades tetraédricas de  $\text{AlO}_2$  y  $\text{SiO}_2$  y una composición empírica en la forma de hidrógeno después de calcinación, intercambio iónico y calcinación y en una base anhidra expresada por una fórmula empírica de



y donde M1 es al menos un catión intercambiable seleccionado del grupo que consiste en metales alcalinos, metales alcalinotérreos, metales de tierras raras, cinc, ion amonio, ion hidrógeno y combinaciones de los mismos, "a" es la relación molar de M1 a (Al + E) y varía de 0,05 a 50, "N" es el promedio de la valencia ponderado de M1 y tiene un valor de +1 a +3, E es un elemento seleccionado del grupo que consiste en galio, hierro, boro y combinaciones de los mismos, "x" es la fracción molar de E y varía de 0 a 1,0, "y'" es la relación molar de Si a (Al + E) y varía de más de 9 a casi sílice pura y "z'" es la relación molar de O a (Al + E) y tiene un valor determinado por la ecuación:

$$z'' = (a \cdot N + 3 + 4 \cdot y')/2$$

y se caracteriza por que tiene regiones TUN y regiones IMF que están alineadas coherentemente de modo que el eje de la zona  $[010]_{\text{TUN}}$  y el eje de la zona  $[001]_{\text{IMF}}$  son paralelos entre sí y hay continuidad de los planos cristalinos del tipo  $(002)_{\text{TUN}}$  y  $(060)_{\text{IMF}}$ , donde la indización se refiere a celdas de unidad  $C_{2/m}$  monoclinica y  $C_{mcm}$  ortorrómbica para TUN e IMF, respectivamente; y

(c) combinaciones de los mismos.

2. El proceso de la reivindicación 1, en el que el primer material compuesto catalítico se caracteriza además por que tiene el patrón de difracción de rayos X que tiene al menos los espaciados-d e intensidades expuestos en la tabla A1:

Tabla A1

2θ	d(Å)	I/Io %
7,17-7,21	12,25-12,31	vw-m
7,5-8,1*	11,78-10,91	w-m
8,88	9,95	m
9,17	9,63	w-m
12,47-12,62	7,09-7,00	w-m

2θ	d(Å)	I/Io %
17,7	5,01	vw-m
22,8-23,2	3,90-3,83	vs
23,39-23,49	3,80-3,78	m-s
25,01-25,31	3,56-3,52	m
28,74-29,25	3,10-3,05	w-m
45,08-45,29	2,01-2,00	w

\* pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes

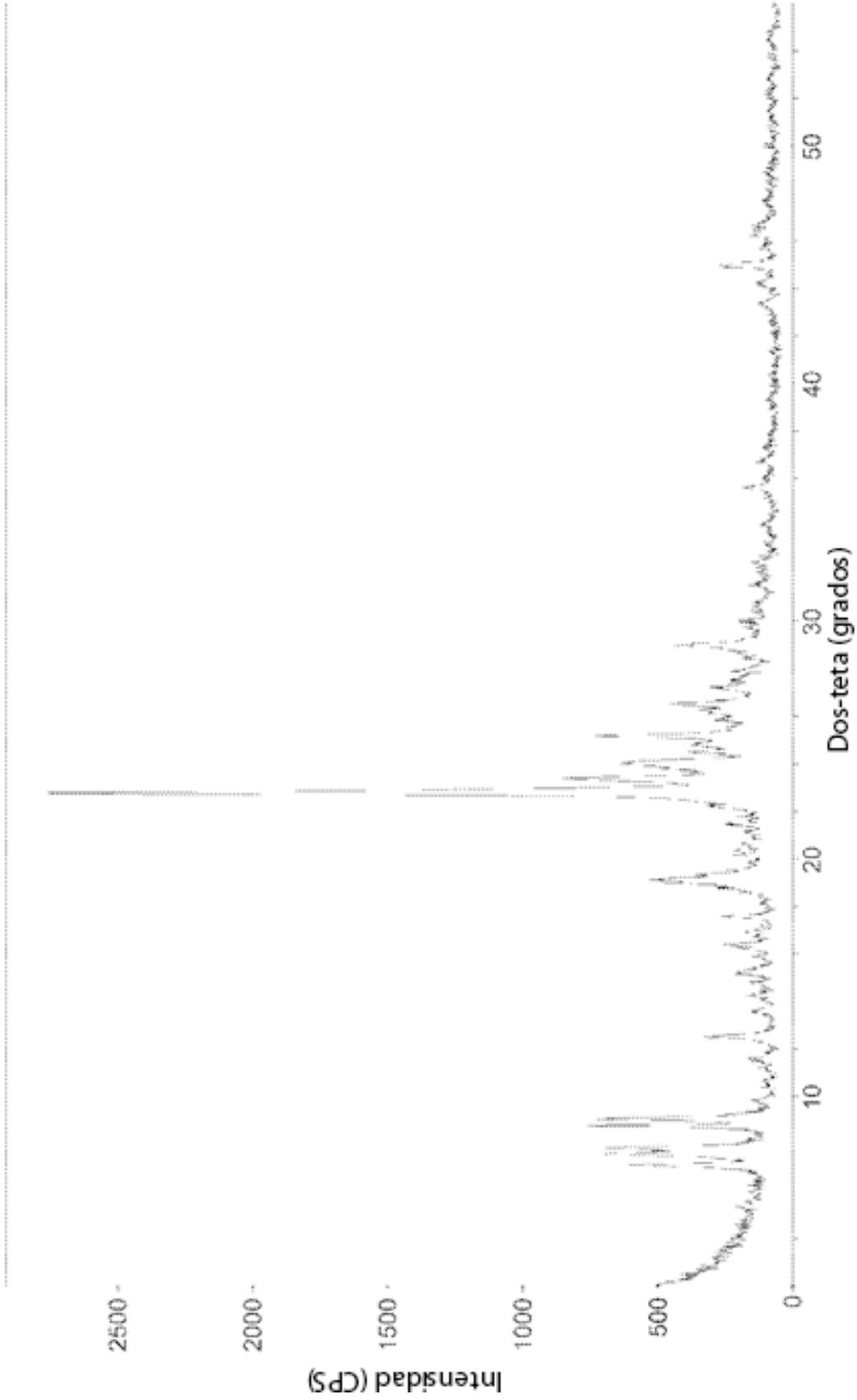
y el segundo material compuesto catalítico se caracteriza además por que tiene el patrón de difracción de rayos X que tiene al menos los espaciados-d e intensidades expuestos en la tabla B1:

Tabla B1

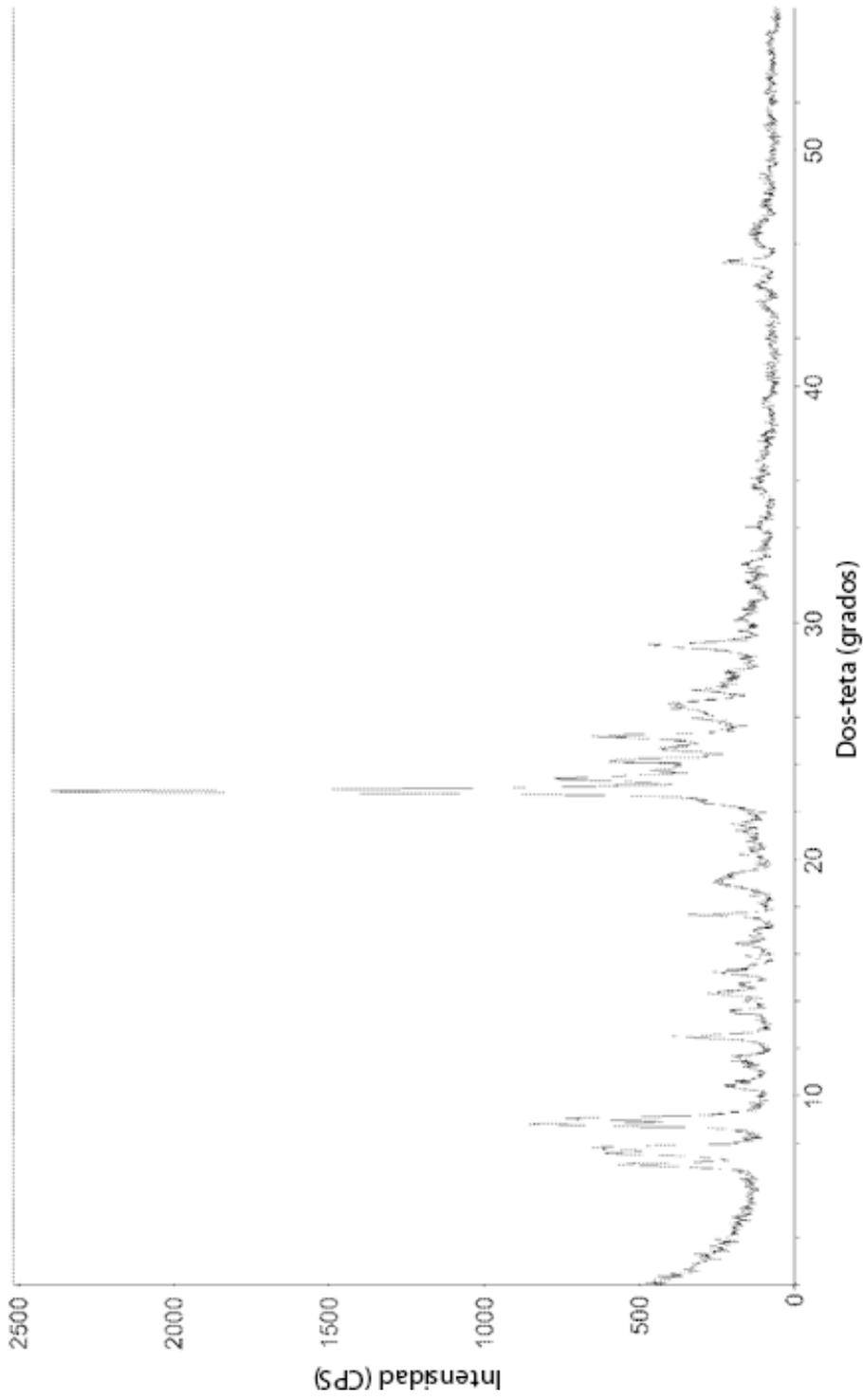
2θ	d(Å)	I/Io %
7,11-7,16	12,42-12,25	vw-m
7,5-8,1*	11,78-10,91	m-s
8,84	10,00	m-s
9,06-9,08	9,75-9,73	w-m
9,24	9,56	vw-m
12,46-12,53	7,10-7,06	w-m
22,56	3,94	vw-m
22,75-23,2	3,90-3,83	vs
23,40	3,80	m-s
24,12-24,23	3,69-3,67	w-m
24,92-25,37	3,57-3,51	m
28,71-29,27	3,11-3,05	w-m
45,32-45,36	2,00	w

\* pico compuesto que consiste en múltiples reflejos solapantes

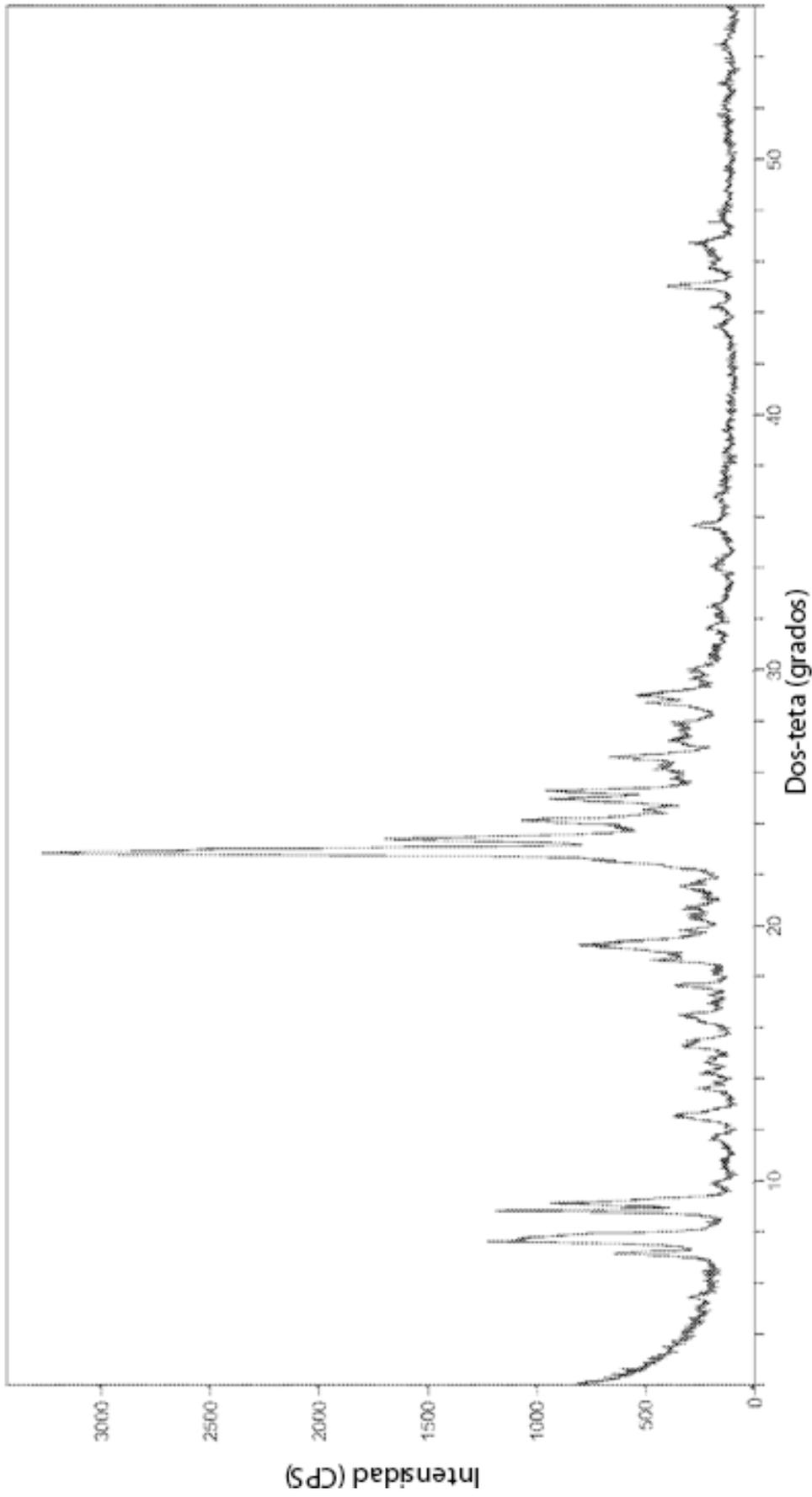
3. El proceso de la reivindicación 1, en el que el material compuesto catalítico es térmicamente estable hasta una temperatura de más de 600 °C.
- 5 4. El proceso de la reivindicación 1, en el que el material compuesto catalítico tiene un volumen de microporos como un porcentaje del volumen de poros total de más de un 60 %.
5. El proceso de la reivindicación 1, en el que el suministro comprende además al menos un alcano que tiene de 1 a 6 átomos de carbono.
- 10 6. El proceso de la reivindicación 1, en el que el primer aromático es benceno.
7. El proceso de la reivindicación 1, en el que el primer aromático es benceno y el segundo aromático es tolueno o xileno.
8. El proceso de la reivindicación 1, en el que Q es una mezcla 1:1 de 1-metilpirrolidina y dimetiletilamina y R es un alcano sustituido con A,Ω-dihalógeno que tiene entre 3 y 6 átomos de carbono.
- 15 9. El proceso de la reivindicación 1, en el que el material compuesto catalítico tiene un volumen de microporos como un porcentaje del volumen de poros total de más de un 90 %.
10. El proceso de la reivindicación 1, donde R se selecciona del grupo que consiste en 1,3-dicloropropano, 1,4-diclorobutano, 1,5-dicloropentano, 1,6-diclorohexano, 1,3-dibromopropano, 1,4-dibromobutano, 1,5-dibromopentano, 1,6-dibromohexano, 1,3-diyodopropano, 1,4-diyodobutano, 1,5-diyodopentano, 1,6-diyodohexano y combinaciones de los mismos y donde Q se selecciona del grupo que consiste en 1-etilpirrolidina, 1-metilpirrolidina, 1-etilazetidina, 1-metilazetidina, trietilamina, dietilmetilamina, dimetiletilamina, trimetilamina, dimetilbutilamina, dimetilpropilamina, dimetilisopropilamina, metiletilpropilamina, metetilisopropilamina, dipropilamina, diisopropilamina, ciclopentilamina, metilciclopentilamina, hexametenimina y combinaciones de los mismos.
- 20



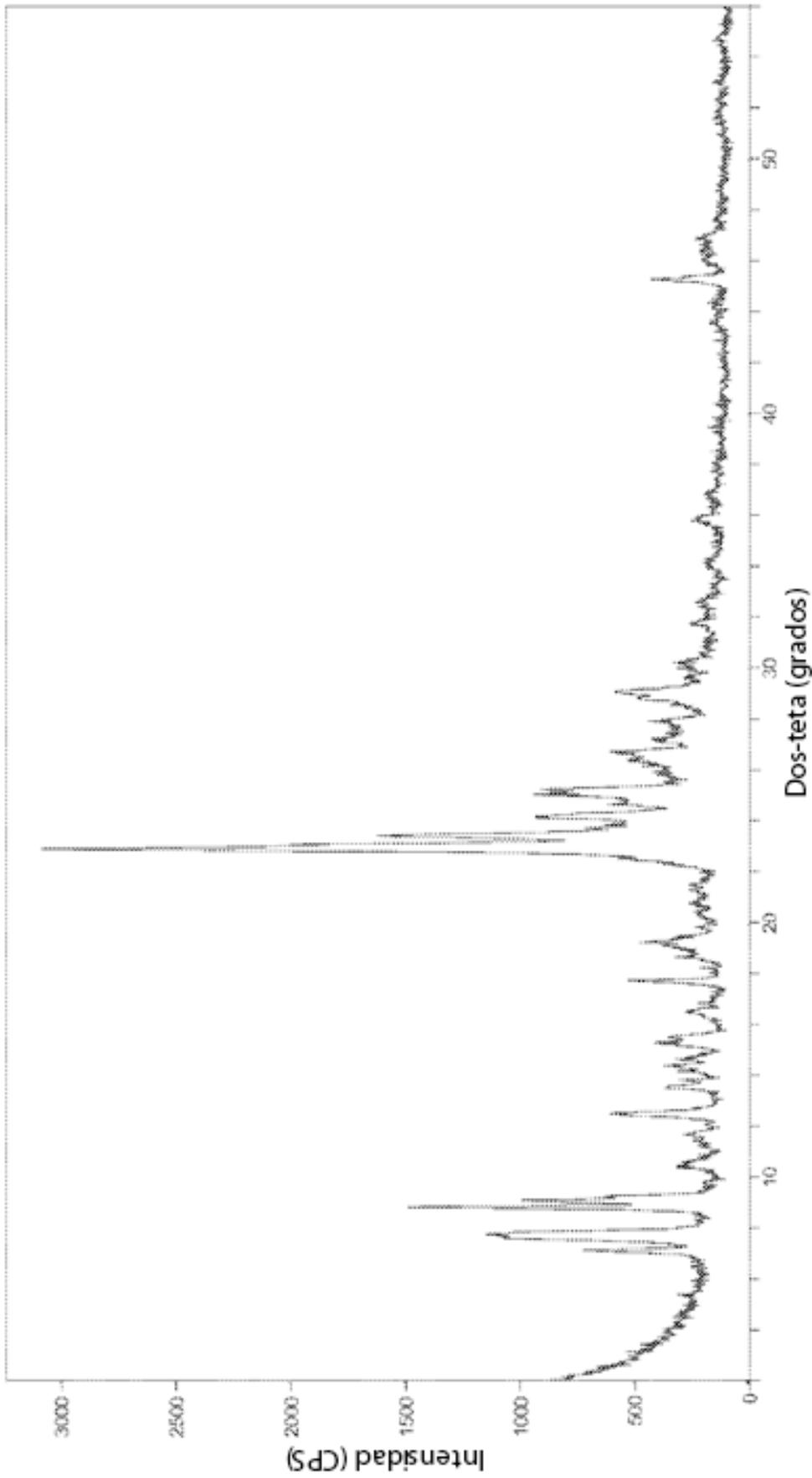
**FIG. 1**



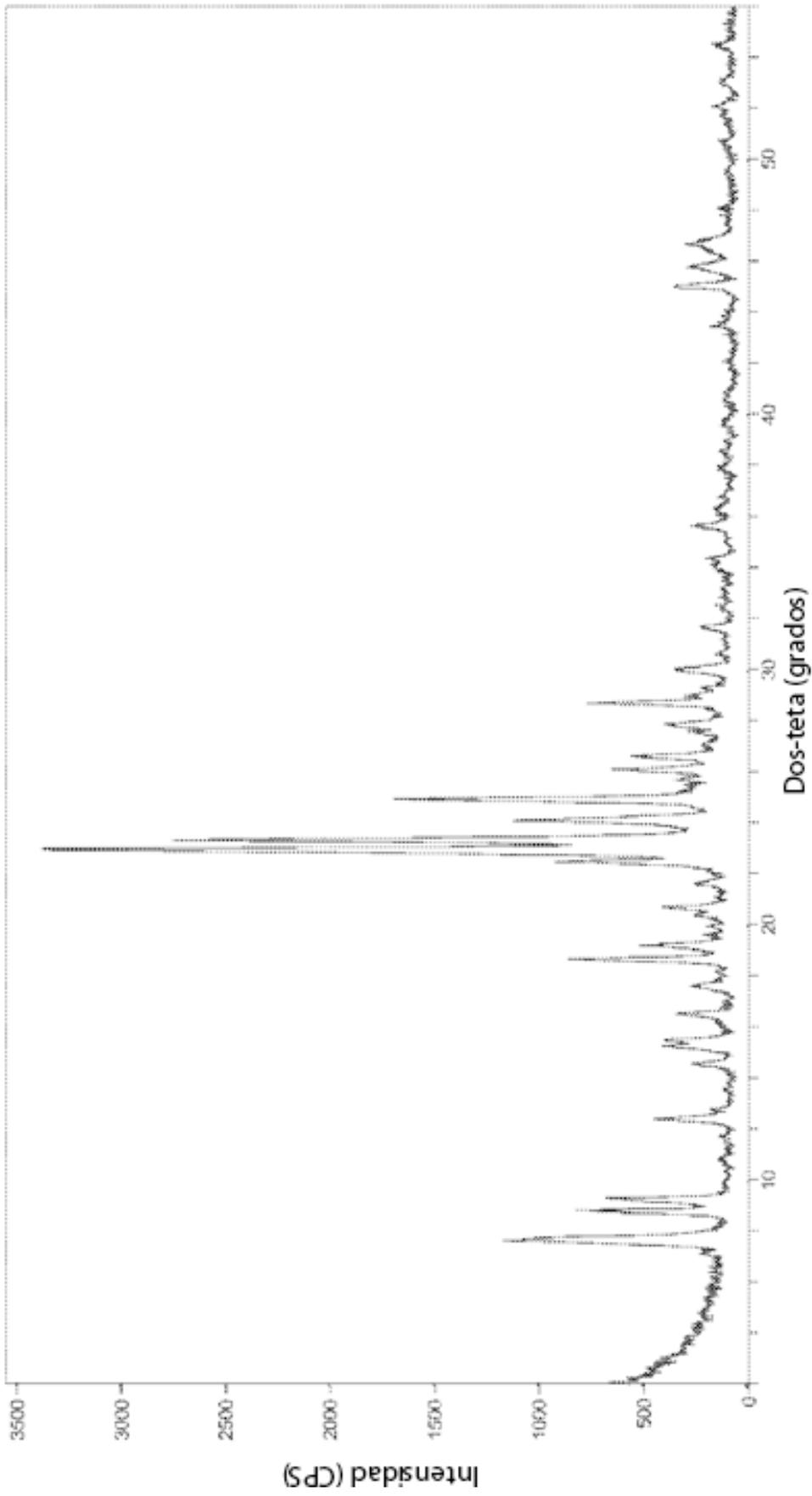
**FIG. 2**



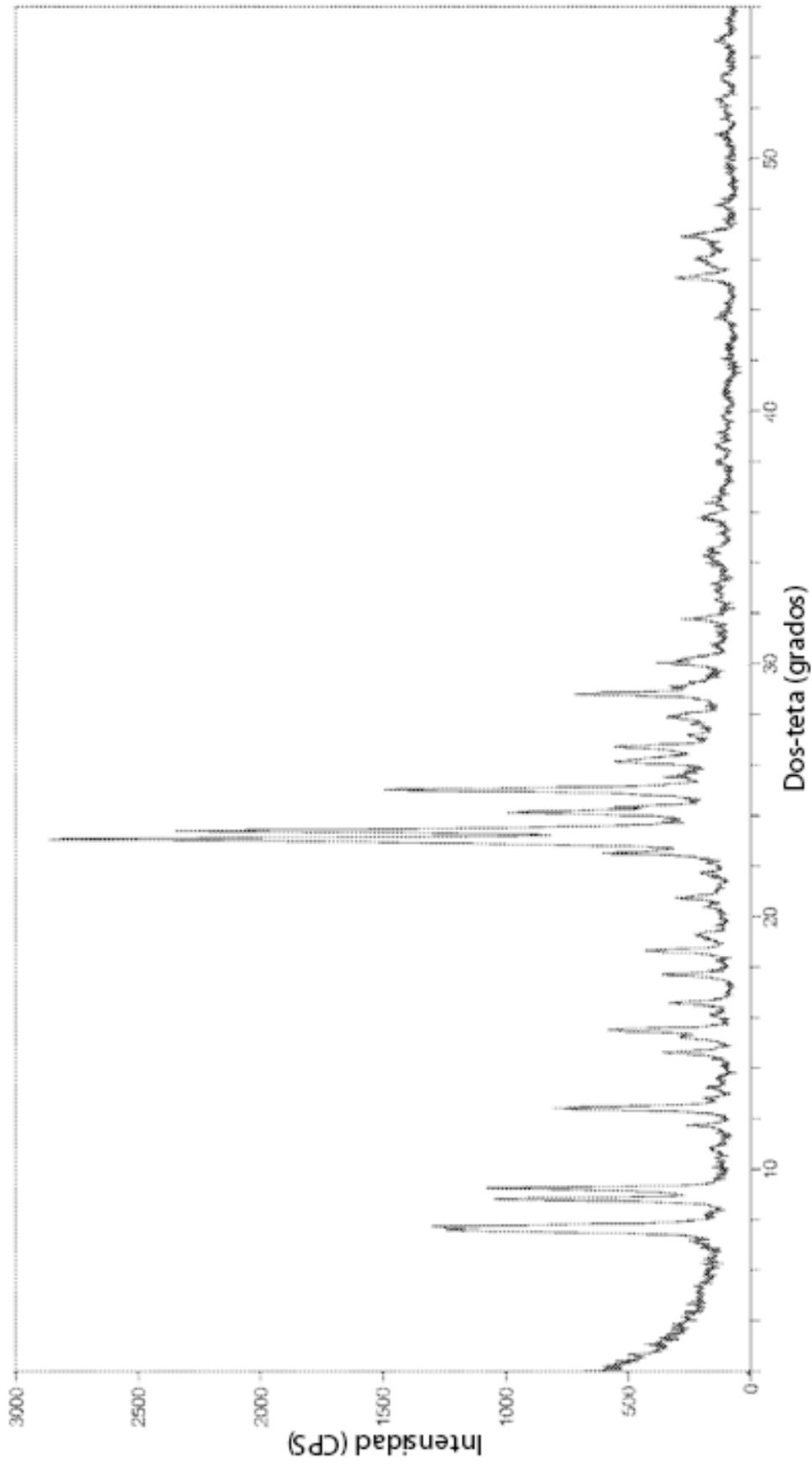
**FIG. 3**



**FIG. 4**



**FIG. 5**



**FIG. 6**

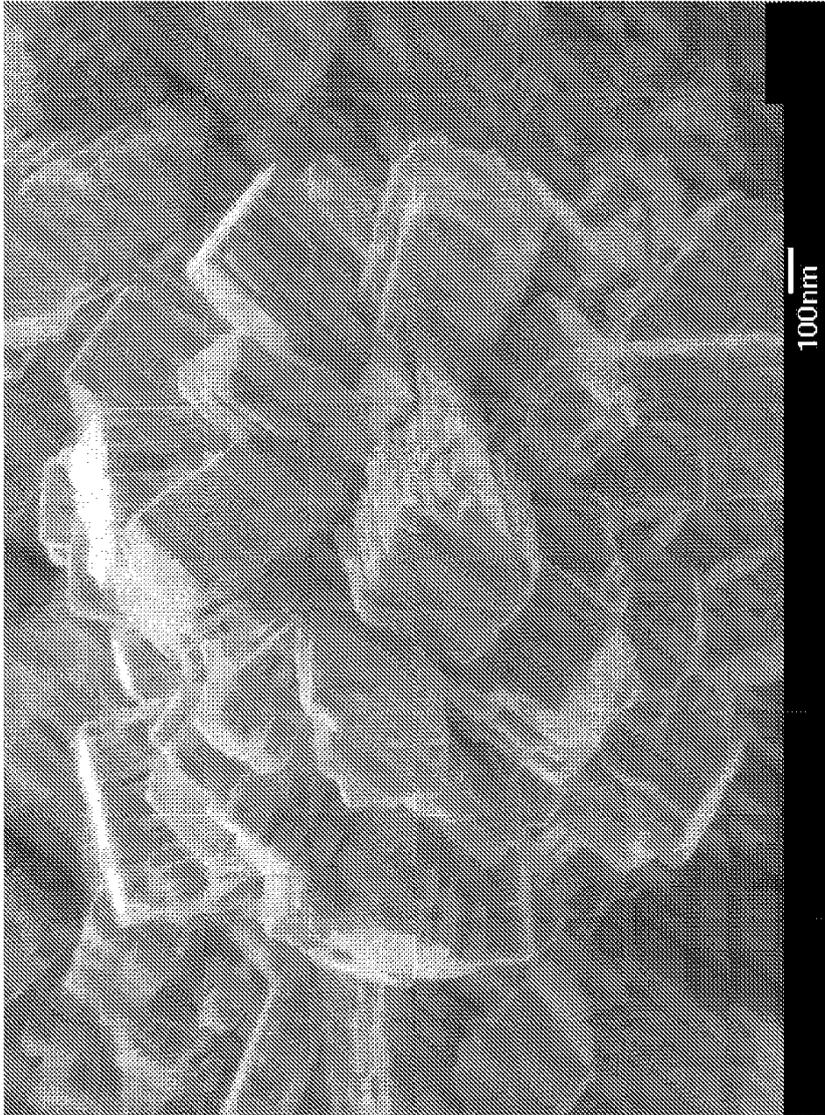


FIG. 7

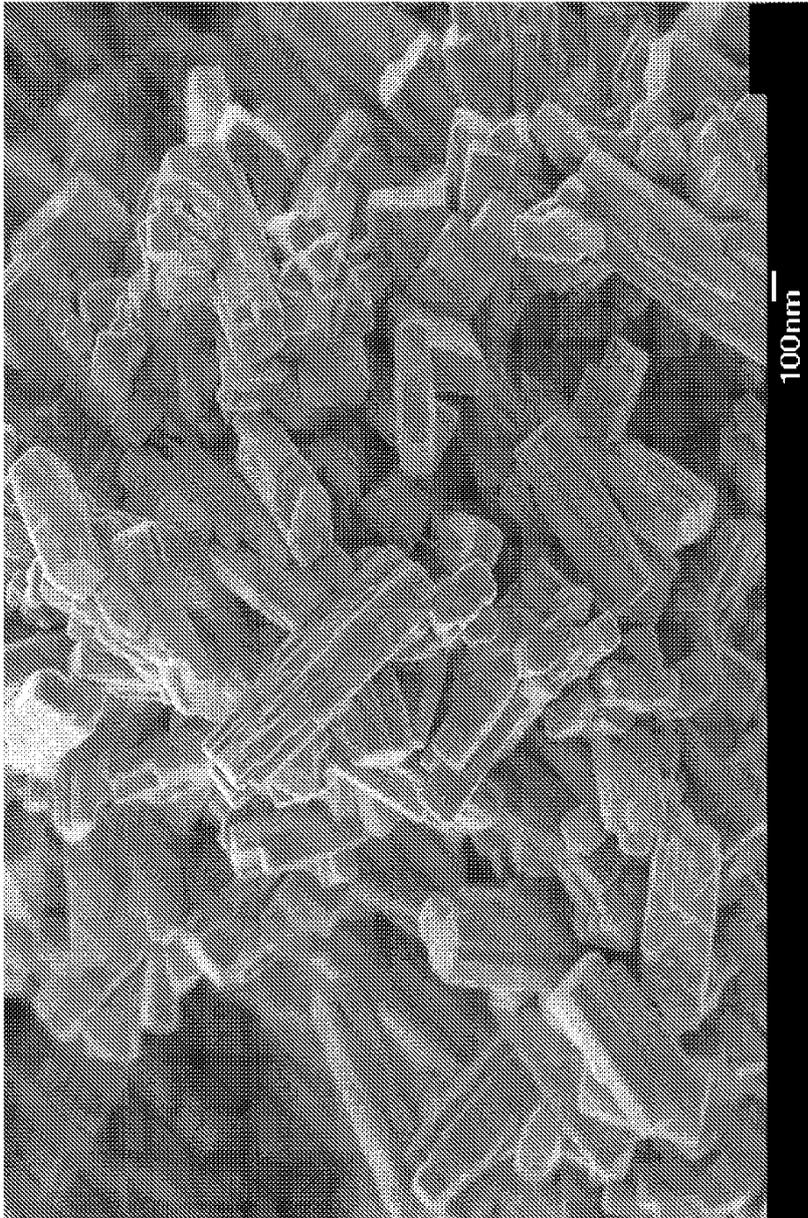


FIG. 8

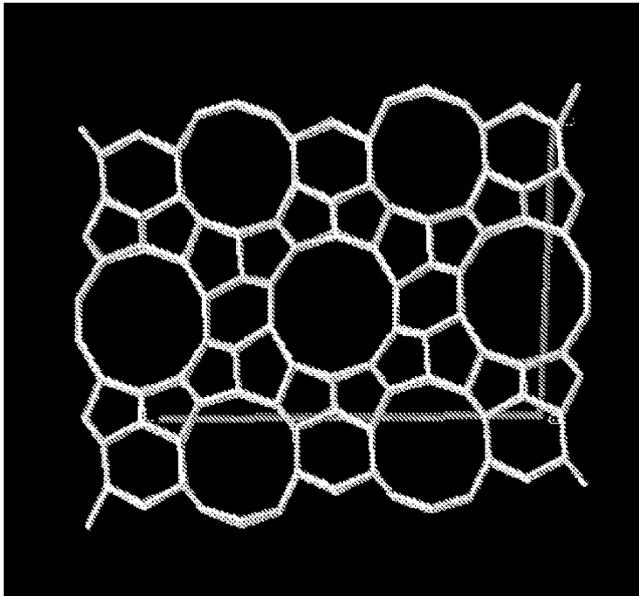
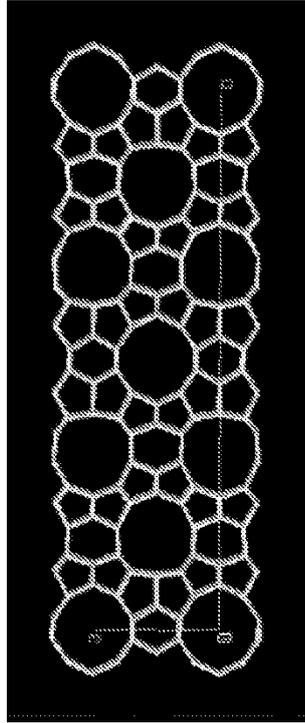
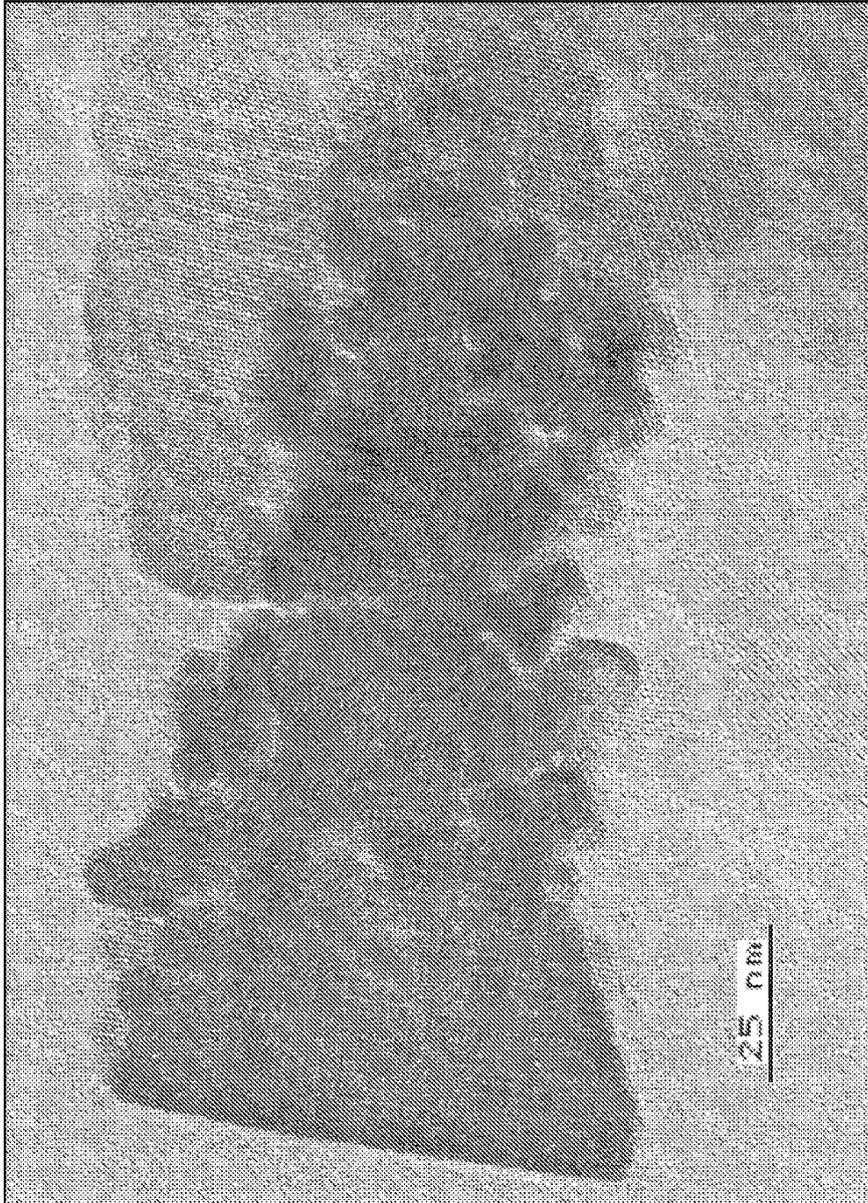


FIG. 9



**FIG. 10**

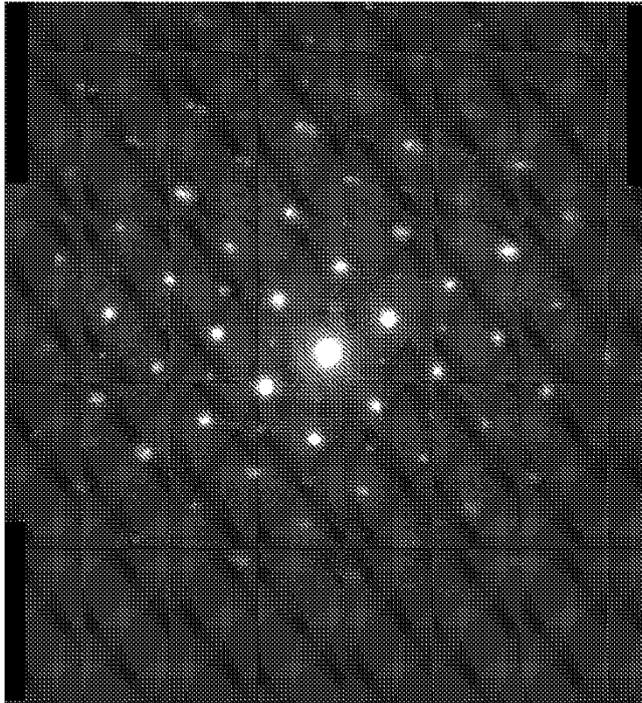
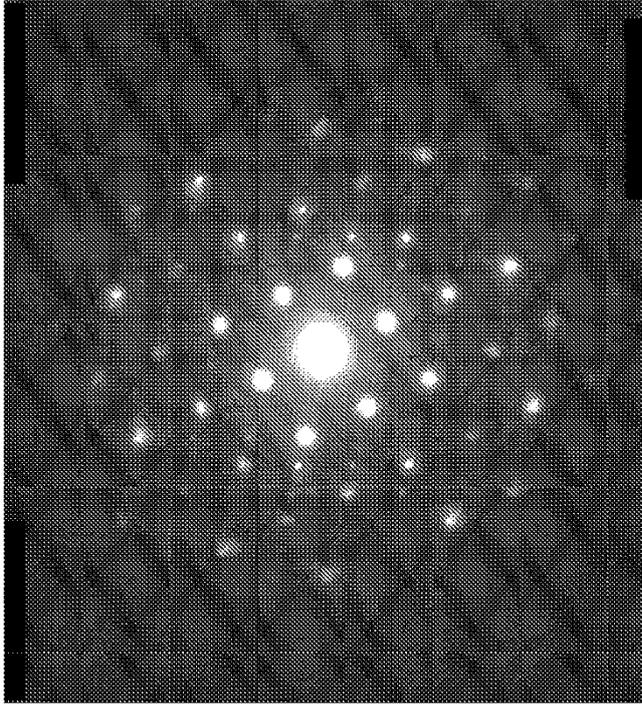


FIG. 11

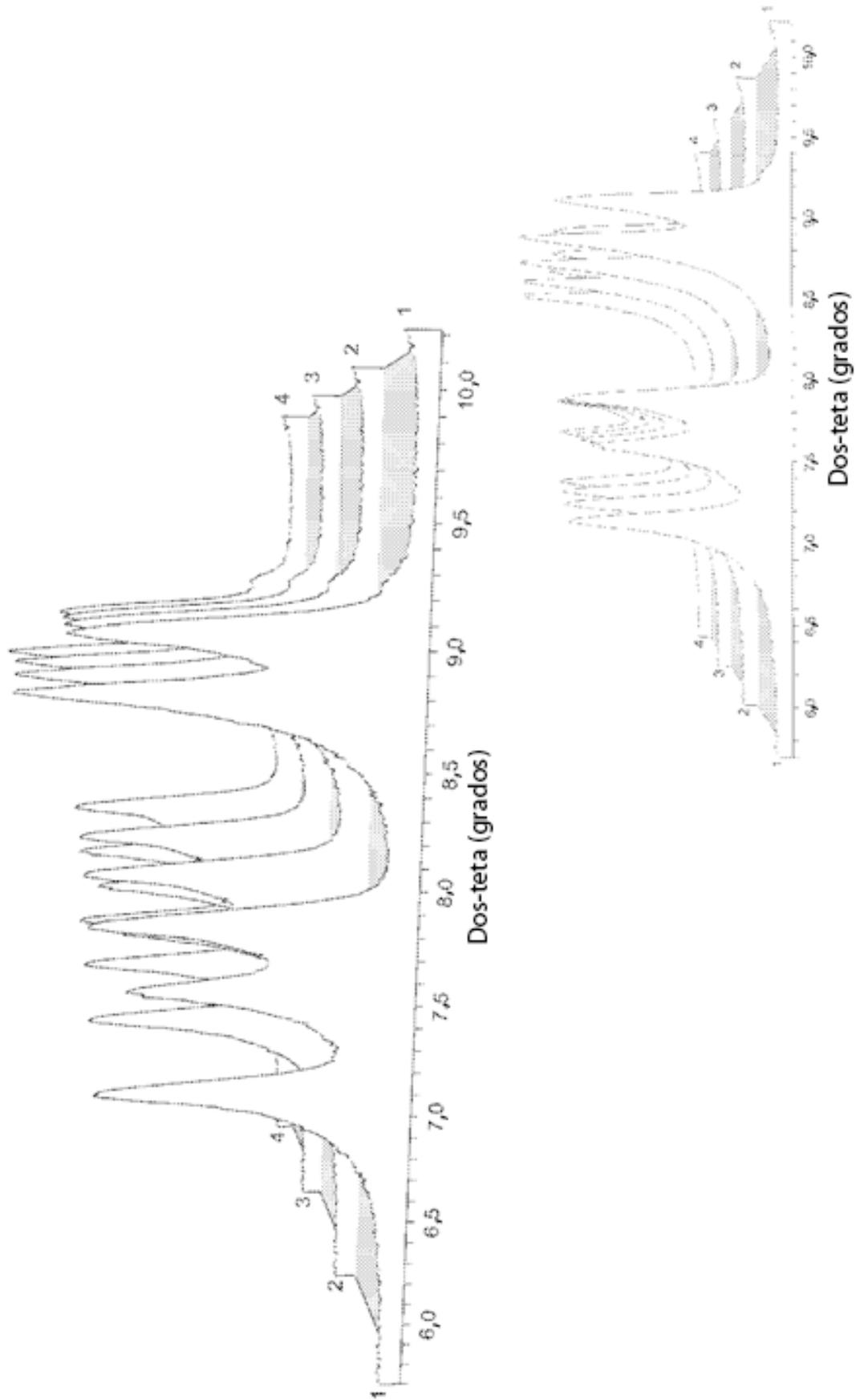


FIG. 12

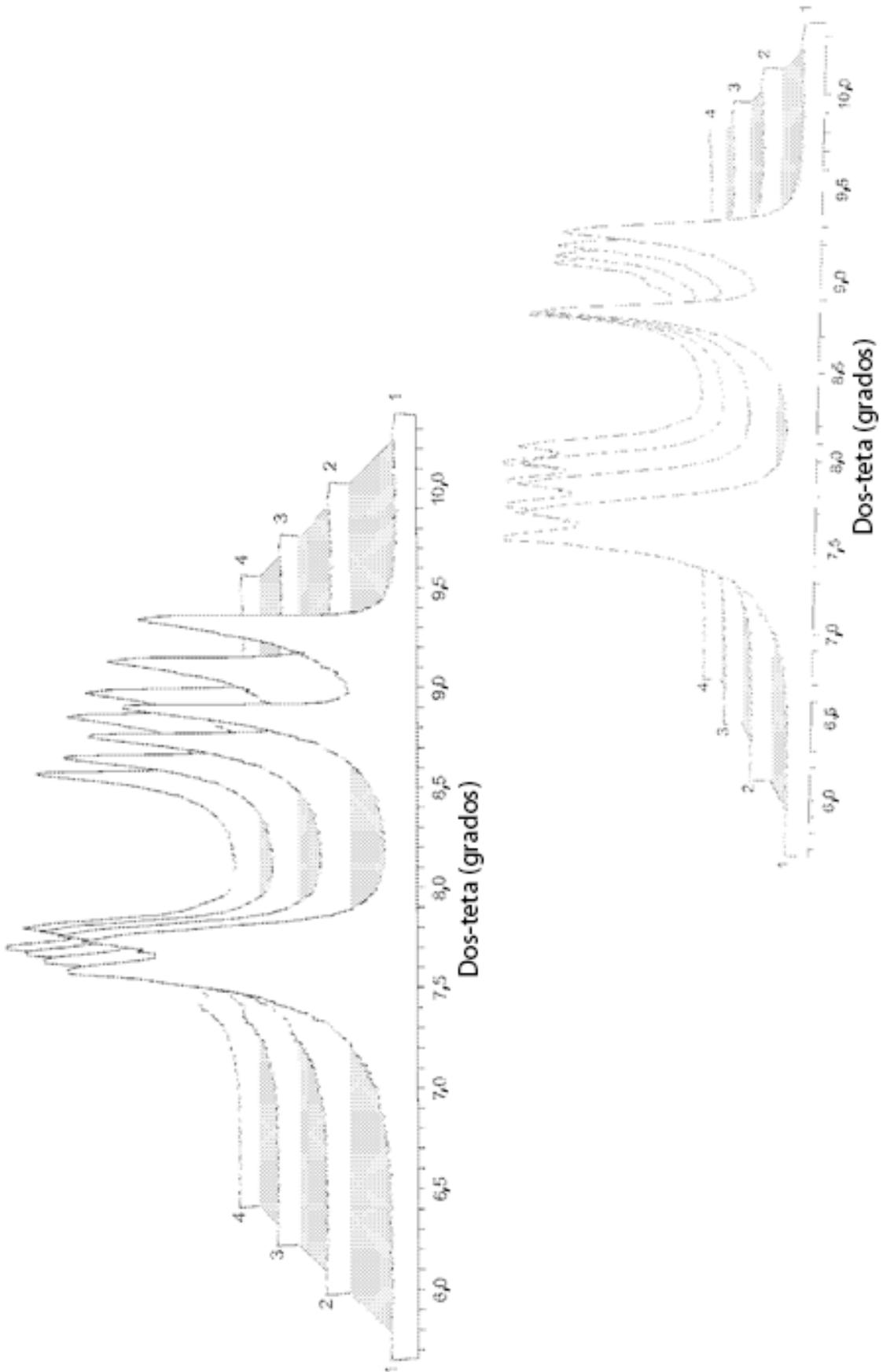


FIG. 13