

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 745 930**

51 Int. Cl.:

**C01B 39/48** (2006.01)

**B01J 29/72** (2006.01)

**B01J 29/78** (2006.01)

**B01J 29/70** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **04.11.2005 PCT/US2005/040226**

87 Fecha y número de publicación internacional: **26.05.2006 WO06055305**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **04.11.2005 E 05824320 (5)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **10.07.2019 EP 1824786**

54 Título: **ITQ-27, nuevo material microporoso cristalino**

30 Prioridad:

**19.11.2004 US 629463 P**  
**27.09.2005 US 235852**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**04.03.2020**

73 Titular/es:

**EXXONMOBIL RESEARCH AND ENGINEERING  
COMPANY (100.0%)**  
**1545 Route 22 East P.O. Box 900**  
**Annandale, NJ 08801-0900, US**

72 Inventor/es:

**STROHMAIER, KARL, G.;**  
**DORSET, DOUGLAS, L.;**  
**CORMA, AVELINO;**  
**DIAZ, MARIA, JOSE y**  
**REY, FERNANDO**

74 Agente/Representante:

**LEHMANN NOVO, María Isabel**

ES 2 745 930 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**

ITQ-27, nuevo material microporoso cristalino

**ANTECEDENTES DE LA INVENCION**

5 Los materiales microporosos, incluyendo zeolitas y silicoaluminofosfatos, son ampliamente conocidos en la industria petrolífera como absorbentes, catalizadores y soportes de catalizador. Sus estructuras cristalinas consisten en disposiciones tridimensionales que contienen aberturas de poros, canales y celdas internas uniformes de dimensiones ( $<20\text{\AA}$ ) similares a la mayoría de los hidrocarburos. La composición de las disposiciones puede ser tal que sean aniónicas, lo que requiere la presencia de cationes ajenos a la disposición para equilibrar la carga negativa. Estos cationes ajenos a la disposición, tales como cationes de metales alcalinos o alcalinotérreos, son intercambiables, bien totalmente o bien parcialmente, con otro tipo de catión utilizando técnicas de intercambio iónico de un modo convencional. Si estos cationes ajenos a la disposición se convierten en la forma protónica mediante, por ejemplo, tratamientos con ácidos o intercambio con cationes amonio seguido por calcinación para retirar el amoníaco, esto imparte al material centros ácidos de Bronstead que tienen actividad catalítica. La combinación de acidez y aberturas de poros restringidas da a estos materiales propiedades catalíticas no disponibles con otros materiales debido a su capacidad para excluir o restringir algunos de los productos, reaccionantes y/o estados de transición en muchas reacciones. Los materiales no reactivos, tales como disposiciones de sílice y aluminofosfato puras, también son útiles y se pueden usar en procedimientos de absorción y separación de líquidos, gases y moléculas reactivas tales como alquenos.

20 La familia de las composiciones microporosas cristalinas conocidas como tamices moleculares, que exhiben las características de intercambio iónico y/o adsorción de las zeolitas, son los aluminofosfatos, identificados por el acrónimo AIPO, y aluminofosfatos sustituidos como los divulgados en las Pat. EE. UU. nº 4.310.440 y 4.440.871. La Pat. EE. UU. nº 4.440.871 divulga una clase de aluminofosfatos de sílice, que son identificados por el acrónimo SAPO y que tienen diferentes estructuras que se identifican por su patrón de difracción de rayos X. Las estructuras se identifican mediante un valor numérico después de AIPO, SAPO, MeAPO (Me = metal), etc. (Flanigen y cols., *Proc. 7th Int. Zeolite Conf.*, p. 103 (1986) y pueden incluir sustituciones de Al y P por B, Si, Be, Mg, Ge, Zn, Fe, Co, Ni, etc. La presente invención es un nuevo tamiz molecular que tiene una estructura dispuesta única.

30 ExxonMobil y otros usan intensivamente diversos materiales microporosos, tales como faujasita, mordenita y ZSM-5, en muchas aplicaciones comerciales. Estas aplicaciones incluyen reformado, craqueo, hidrocraqueo, alquilación, oligomerización, desparafinado e isomerización. Cualquier nuevo material tiene el potencial de mejorar el rendimiento catalítico sobre los catalizadores empleados actualmente.

35 Ahora mismo hay más de 150 estructuras dispuestas microporosas como las tabuladas en the International Zeolite Association. Existe la necesidad de nuevas estructuras, que tengan diferentes propiedades que los materiales conocidos, para mejorar el rendimiento de muchos procedimientos hidrocarbúricos. Cada estructura tiene dimensiones únicas de poros, canales y celdillas, lo que da sus propiedades particulares como las descritas anteriormente. ITQ-27 es un nuevo material dispuesto.

**SUMARIO DE LA INVENCION**

40 ITQ-27 (INSTITUTO DE TECNOLOGÍA QUÍMICA número 27) es un nuevo material microporoso cristalino que tiene una disposición de átomos tetraédricos conectados por átomos de puente, estando definida la disposición de átomos tetraédricos por las interconexiones entre los átomos tetraédricamente coordinados en su disposición del modo mostrado en la Tabla 1. ITQ-27 es estable a la calcinación en aire, absorbe hidrocarburos y es catalíticamente activo para la conversión de hidrocarburos.

45 En una realización, la presente invención se dirige a este nuevo material cristalino en la forma según se sintetiza que es un compuesto de silicato que tiene una composición  $mR:aX_2O_3:YO_2 \cdot nH_2O$  donde R es un compuesto orgánico, X es cualquier metal capaz de coordinación tetraédrica tal como uno o más de B, Ga, Al, Fe, Li, Be, P, Zn, Cr, Mg, Co, Ni, Mn, As, In, Sn, Sb, Ti y Zr, más preferiblemente uno o más metales trivalentes capaces de coordinación tetraédrica, y aún más preferiblemente uno o más de los elementos B, Ga, Al y Fe, e Y es Si solo o en combinación con cualquier otro metal tetravalente capaz de coordinación tetraédrica tal como Ge y Ti y donde  $m = 0,01 - 1$ ,  $a = 0,00 - 0,2$  y  $n = 0 - 10$  y que tiene un patrón de difracción único según se da en la Tabla 2.

55 En una realización más específica, la presente invención se dirige a un compuesto de silicato cristalino calcinado que tiene una composición  $aX_2O_3:YO_2 \cdot nH_2O$ , donde X es cualquier metal capaz de coordinación tetraédrica tal como uno o más de B, Ga, Al, Fe, Li, Be, P, Zn, Cr, Mg, Co, Ni, Be, Mn, As, In, Sn, Sb, Ti y Zr, más preferiblemente uno o más metales trivalentes capaces de coordinación tetraédrica, y aún más preferiblemente uno o más de los elementos B, Ga, Al y Fe, e Y es Si solo o en combinación con cualquier otro metal tetravalente capaz de

coordinación tetraédrica tal como Ge y Ti, y donde  $a = 0,00 - 0,2$  y  $n = 0 - 10$  y que tiene un patrón de difracción único como el dado en la Tabla 3.

5 La presente invención también incluye un método para sintetizar un compuesto de silicato cristalino que tiene el patrón de difracción similar a la Tabla 2, al mezclar conjuntamente una fuente de sílice, un agente que dirige la estructura (SDA) orgánico, agua y un metal opcional (X) y calentar a una temperatura y un tiempo suficientes para cristalizar el silicato, teniendo la composición, en cuanto a relaciones molares, los siguientes intervalos:  $R/YO_2$  de 0,01-1,  $H_2O/YO_2$  de 2-50 y  $X/YO_2$  de 0-0,2, en donde X es cualquier metal trivalente capaz de coordinación tetraédrica, Y es silicio y opcionalmente cualquier otro metal tetravalente capaz de coordinación tetraédrica, y dicho agente que dirige la estructura (SDA) orgánico es difenil-dimetil-fosfonio.

**BREVE DESCRIPCIÓN DE LOS DIBUJOS**

La FIGURA 1 es una representación de difenil-dimetil-fosfonio, el agente que dirige la estructura (SDA) orgánico.

La FIGURA 2 muestra la estructura dispuesta de ITQ-27 que muestra solamente los átomos tetraédricos. Hay cuatro celdillas unitarias, cuyos bordes están definidos por los cuadros grises.

15 La FIGURA 3 muestra el patrón de difracción de rayos X de ITQ-27 según se sintetiza y de ITQ-27 calcinado/deshidratado.

**DESCRIPCIÓN DETALLADA DE LAS REALIZACIONES PREFERIDAS**

20 La presente invención es una nueva estructura de material cristalino. Como con cualquier material cristalino poroso, la estructura de ITQ-27 se puede definir por las interconexiones entre los átomos tetraédricamente coordinados en su disposición. En particular, ITQ-27 tiene una disposición de átomos tetraédricos (T) conectados por átomos de puente, en donde la disposición de átomos tetraédricos se define al conectar los átomos tetraédricos (T) más próximos del modo mostrado en la **Tabla 1**.

25 **Tabla 1**  
**Interconexiones de átomos tetraédricos de ITQ-27**

Átomo T	Conectado a:
T1	T43, T49, T115, T129
T2	T44, T50, T116, T130
T3	T41, T51, T113, T131
T4	T42, T52, T114, T132
T5	T41, T53, T119, T132
T6	T42, T54, T120, T131
T7	T43, T55, T117, T130
T8	T44, T56, T118, T129
T9	T47, T57, T123, T133
T10	T48, T58, T124, T134
T11	T45, T59, T121, T135
T12	T46, T60, T122, T136
T13	T45, T61, T127, T136
T14	T46, T62, T128, T135
T15	T47, T63, T125, T134
T16	T48, T64, T126, T133
T17	T35, T65, T99, T137
T18	T36, T66, T100, T138
T19	T33, T67, T97, T139

## ES 2 745 930 T3

T20	T34, T68, T98, T140
T21	T33, T69, T103, T140
T22	T34, T70, T104, T139
T23	T35, T71, T101, T138
T24	T36, T72, T102, T137
T25	T39, T73, T107, T141
T26	T40, T74, T108, T142
T27	T37, T75, T105, T143
T28	T38, T76, T106, T144
T29	T37, T77, T111, T144
T30	T38, T78, T112, T143
T31	T39, T79, T109, T142
T32	T40, T80, T110, T141
T33	T19, T21, T43, T145
T34	T20, T22, T44, T145
T35	T17, T23, T41, T146
T36	T18, T24, T42, T146
T37	T27, T29, T47, T147
T38	T28, T30, T48, T147
T39	T25, T31, T45, T148
T40	T26, T32, T46, T148
T41	T3, T5, T35, T149
T42	T4, T6, T36, T149
T43	T1, T7, T33, T150
T44	T2, T8, T34, T150
T45	T11, T13, T39, T151
T46	T12, T14, T40, T151
T47	T9, T15, T37, T152
T48	T10, T16, T38, T152
T49	T1, T54, T55, T56
T50	T2, T53, T55, T56
T51	T3, T53, T54, T56
T52	T4, T53, T54, T55
T53	T5, T50, T51, T52
T54	T6, T49, T51, T52
T55	T7, T49, T50, T52
T56	T8, T49, T50, T51
T57	T9, T62, T63, T64
T58	T10, T61, T63, T64
T59	T11, T61, T62, T64
T60	T12, T61, T62, T63

## ES 2 745 930 T3

T61	T13, T58, T59, T60
T62	T14, T57, T59, T60
T63	T15, T57, T58, T60
T64	T16, T57, T58, T59
T65	T17, T70, T71, T72
T66	T18, T69, T71, T72
T67	T19, T69, T70, T72
T68	T20, T69, T70, T71
T69	T21, T66, T67, T68
T70	T22, T65, T67, T68
T71	T23, T65, T66, T68
T72	T24, T65, T66, T67
T73	T25, T78, T79, T80
T74	T26, T77, T79, T80
T75	T27, T77, T78, T80
T76	T28, T77, T78, T79
T77	T29, T74, T75, T76
T78	T30, T73, T75, T76
T79	T31, T73, T74, T76
T80	T32, T73, T74, T75
T81	T88, T97, T104, T129
T82	T87, T98, T103, T130
T83	T86, T99, T102, T131
T84	T85, T100, T101, T132
T85	T84, T105, T112, T133
T86	T83, T106, T111, T134
T87	T82, T107, T110, T135
T88	T81, T108, T109, T136
T89	T96, T113, T120, T137
T90	T95, T114, T119, T138
T91	T94, T115, T118, T139
T92	T93, T116, T117, T140
T93	T92, T121, T128, T141
T94	T91, T122, T127, T142
T95	T90, T123, T126, T143
T96	T89, T124, T125, T144
T97	T19, T81, T115, T122
T98	T20, T82, T116, T121
T99	T17, T83, T113, T124
T100	T18, T84, T114, T123
T101	T23, T84, T119, T126

## ES 2 745 930 T3

T102	T24, T83, T120, T125
T103	T21, T82, T117, T128
T104	T22, T81, T118, T127
T105	T27, T85, T114, T123
T106	T28, T86, T113, T124
T107	T25, T87, T116, T121
T108	T26, T88, T115, T122
T109	T31, T88, T118, T127
T110	T32, T87, T117, T128
T111	T29, T86, T120, T125
T112	T30, T85, T119, T126
T113	T3, T89, T99, T106
T114	T4, T90, T100, T105
T115	T1, T91, T97, T108
T116	T2, T92, T98, T107
T117	T7, T92, T103, T110
T118	T8, T91, T104, T109
T119	T5, T90, T101, T112
T120	T6, T89, T102, T111
T121	T11, T93, T98, T107
T122	T12, T94, T97, T108
T123	T9, T95, T100, T105
T124	T10, T96, T99, T106
T125	T15, T96, T102, T111
T126	T16, T95, T101, T112
T127	T13, T94, T104, T109
T128	T14, T93, T103, T110
T129	T1, T8, T81, T145
T130	T2, T7, T82, T145
T131	T3, T6, T83, T146
T132	T4, T5, T84, T146
T133	T9, T16, T85, T147
T134	T10, T15, T86, T147
T135	T11, T14, T87, T148
T136	T12, T13, T88, T148
T137	T17, T24, T89, T149
T138	T18, T23, T90, T149
T139	T19, T22, T91, T150
T140	T20, T21, T92, T150
T141	T25, T32, T93, T151
T142	T26, T31, T94, T151

T143	T27, T30, T95, T152
T144	T28, T29, T96, T152
T145	T33, T34, T129, T130
T146	T35, T36, T131, T132
T147	T37, T38, T133, T134
T148	T39, T40, T135, T136
T149	T41, T42, T137, T138
T150	T43, T44, T139, T140
T151	T45, T46, T141, T142
T152	T47, T48, T143, T144

Los átomos tetraédricos son aquellos capaces de tener coordinación tetraédrica, incluyendo uno o más de, pero no limitados a, litio, berilio, boro, magnesio, aluminio, silicio, fósforo, titanio, cromo, manganeso, hierro, cobalto, níquel, cobre, cinc, circonio, galio, germanio, arsénico, indio, estaño y antimonio.

5 En una realización, este nuevo compuesto de silicato cristalino tiene una composición  $mR:aX_2O_3:YO_2 \cdot nH_2O$  donde R es un compuesto orgánico, y X es cualquier metal capaz de coordinación tetraédrica tal como uno o más de B, Ga, Al, Fe, Li, Be, P, Zn, Cr, Mg, Co, Ni, Mn, As, In, Sn, Sb, Ti y Zr, más preferiblemente uno o más metales trivalentes capaces de coordinación tetraédrica, y aún más preferiblemente uno o más de los elementos B, Ga, Al y Fe, e Y es Si solo o en combinación con cualquier otro metal tetravalente capaz de coordinación tetraédrica tal como Ge y Ti, y donde  $m = 0,01 - 1$ ,  $a = 0,00 - 0,2$  y  $n = 0 - 10$ . Este compuesto tiene el patrón de difracción único dado en la **Tabla 2** y mostrado en la Figura 3.

**Tabla 2**

d (Å)	int. relativa (%)
14,1-13,3	60-100
13,1-12,3	5-50
11,4-10,8	80-100
6,99-6,77	20-70
4,93-4,82	60-100
4,77-4,67	20-70
4,73-4,63	20-70
4,51-4,42	20-70
4,29-4,21	60-100
4,11-4,03	30-80
3,86-3,79	50-90
3,65-3,59	30-80
3,53-3,47	20-70
3,48-3,43	30-80
3,42-3,37	5-50
3,38-3,33	60-100
3,23-3,18	5-50
3,06-3,02	5-50

15 Otras realizaciones de la nueva estructura incluyen un compuesto calcinado de composición  $aX_2O_3:YO_2 \cdot nH_2O$ , donde X es cualquier metal capaz de coordinación tetraédrica tal como uno o más de B, Ga, Al, Fe, Li, Be, P, Zn, Cr, Mg, Co, Ni, Be, Mn, As, In, Sn, Sb, Ti y Zr, más preferiblemente uno o más metales trivalentes capaces de coordinación tetraédrica, y aún más preferiblemente uno o más de los elementos B, Ga, Al, Fe, e Y es Si solo o en combinación con cualquier otro metal tetravalente capaz de coordinación tetraédrica tal como Ge y Ti y donde  $a = 0,00 - 0,2$ , y  $n = 0 - 10$ . Este compuesto tiene el patrón de difracción único dado en la **Tabla 3** y la Figura 3.

**Tabla 3**

d (Å)	int. relativa (%)
14,2-13,4	80-100
11,3-10,8	50-90
4,93-4,83	30-80
4,72-4,62	50-90
4,49-4,41	5-40
4,26-4,18	30-80
4,06-3,99	20-70
3,87-3,80	30-80
3,63-3,58	30-80
3,49-3,44	20-70
3,36-3,31	30-80
3,21-3,16	5-40
3,06-3,02	5-40
2,545-2,518	5-40

Este nuevo compuesto se forma mediante el método de mezclar entre sí una fuente de sílice, un agente que dirige la estructura (SDA) orgánico, agua y una fuente opcional de metal y calentar a una temperatura y un tiempo suficientes para cristalizar el silicato. El método se describe posteriormente.

El material cristalino poroso sintético de esta invención, ITQ-27, es una fase cristalina que tiene un sistema de canales bidimensional único que comprende intersectar anillos de 12 miembros de átomos tetraédricamente coordinados. Los canales de anillos de 12 miembros tienen dimensiones transversales entre los átomos de oxígeno de puente de aproximadamente 7,4 Angstroms por aproximadamente 7,1 Angstroms.

Se pueden producir variaciones en el patrón de difracción de rayos X entre las diferentes formas de composición química de ITQ-27, de modo que la estructura de ITQ-27 exacta puede variar debido a su composición particular y si se ha calcinado y rehidratado o no.

En la forma según se sintetiza, ITQ-27 tiene un patrón de difracción de rayos X característico, cuyas líneas esenciales se dan en la Tabla 2 medidas con radiación  $K\alpha$  de Cu. Se producen variaciones como una función de la composición específica y su carga en la estructura. Por esta razón, las intensidades y los espaciamientos  $d$  se dan como intervalos.

El material ITQ-27 de la presente invención puede estar calcinado para retirar el agente de plantillaje orgánico sin pérdida de cristalinidad. Esto es útil para activar el material para la absorción posterior de otras moléculas invitadas tales como hidrocarburos. Las líneas esenciales, que únicamente definen ITQ-27 calcinado/deshidratado, se muestran en la **Tabla 3** medidas con radiación  $K\alpha$  de Cu. Se producen variaciones como una función de la composición específica, la temperatura y el nivel de hidratación en la estructura.

Además, la descripción de la estructura de ITQ-27 mediante las interconexiones de los átomos tetraédricos como en la Tabla 1 anterior, se puede definir por su celdilla unitaria, que es la unidad repetitiva menor que contiene los elementos estructurales del material. La estructura de los poros de ITQ-27 se ilustra en la FIGURA 2 (que muestra solamente los átomos tetraédricos) en la dirección del canal de anillos de 12 miembros. Hay una sola celdilla unitaria en la FIGURA 2, cuyos límites son definidos por el cuadro. La **Tabla 4** lista las posiciones típicas de cada átomo tetraédrico en la celdilla unitaria en unidades de Angstroms. Cada átomo tetraédrico está unido a átomos de puente, que también están unidos a átomos tetraédricos adyacentes. Los átomos tetraédricos son los que son capaces de tener coordinación tetraédrica, incluyendo uno o más de, pero no limitados a, litio, berilio, boro, magnesio, aluminio, silicio, fósforo, titanio, cromo, manganeso, hierro, cobalto, níquel, cobre, cinc, circonio, galio, germanio, arsénico, indio, estaño y antimonio. Los átomos de puente son los que son capaces de conectar dos átomos tetraédricos, cuyos ejemplos incluyen, pero no se limitan a, átomos de oxígeno, nitrógeno, flúor, azufre, selenio y carbono.

En el caso del oxígeno, también es posible que el oxígeno de puente esté también conectado a un átomo de hidrógeno para formar un grupo hidroxilo (-OH-). En el caso del carbono, también es posible que el carbono también esté conectado a dos átomos de hidrogeno para formar un grupo metileno (-CH<sub>2</sub>-). Por ejemplo, grupos metileno de puente se han observado en el difosfonato de circonio, MIL-57. Véase: C. Serre, G. Férey, *J. Mater. Chem.* **12**, p. 2367 (2002). Bridging sulfur and selenium atoms have been seen in the UCR-20-23 family of microporous materials. Véase: N. Zheng, X. Bu, B. Wang, P. Feng, *Science* **298**, p. 2366 (2002). Bridging fluorine atoms have been seen in



lithio hydrazinium fluoroberyllate, which has the ABW structure type. Véase: M.R. Anderson, I.D. Brown, S. Vilminot, *Acta Cryst.* **B29**, p. 2626 (1973). Puesto que los átomos tetraédricos se pueden mover debido a otras fuerzas cristalinas (presencia de especies inorgánicas u orgánicas, por ejemplo), o por la elección de átomos tetraédricos y de puente, está implicado un intervalo de  $\pm 0,5$  Angstroms para las posiciones de las coordenadas x y un intervalo de  $\pm 1,0$  Angstroms para las posiciones de las coordenadas y y z.

**Tabla 4**

Posiciones de átomos tetraédricos (T) para la estructura de ITQ-27. Los valores, en unidades de Angstroms, son aproximados y son típicos cuando T = silicio y los átomos de puente son oxígeno

10

Átomo	x(Å)	y(Å)	z(Å)
T1	2,766	2,569	4,038
T2	11,191	23,531	4,038
T3	11,191	2,569	23,712
T4	2,766	23,531	23,712
T5	11,191	23,531	23,712
T6	2,766	2,569	23,712
T7	2,766	23,531	4,038
T8	11,191	2,569	4,038
T9	2,766	15,619	17,913
T10	11,191	10,481	17,913
T11	11,191	15,619	9,837
T12	2,766	10,481	9,837
T13	11,191	10,481	9,837
T14	2,766	15,619	9,837
T15	2,766	10,481	17,913
T16	11,191	15,619	17,913
T17	9,744	2,569	17,913
T18	4,213	23,531	17,913
T19	4,213	2,569	9,837
T20	9,744	23,531	9,837
T21	4,213	23,531	9,837
T22	9,744	2,569	9,837
T23	9,744	23,531	17,913
T24	4,213	2,569	17,913
T25	9,744	15,619	4,038
T26	4,213	10,481	4,038
T27	4,213	15,619	23,712
T28	9,744	10,481	23,712
T29	4,213	10,481	23,712
T30	9,744	15,619	23,712
T31	9,744	10,481	4,038
T32	4,213	15,619	4,038
T33	2,929	0,000	8,443
T34	11,028	0,000	8,443
T35	11,028	0,000	19,307
T36	2,929	0,000	19,307
T37	2,929	13,050	22,318
T38	11,028	13,050	22,318

## ES 2 745 930 T3

T39	11,028	13,050	5,432
T40	2,929	13,050	5,432
T41	9,908	0,000	22,318
T42	4,049	0,000	22,318
T43	4,049	0,000	5,432
T44	9,908	0,000	5,432
T45	9,908	13,050	8,443
T46	4,049	13,050	8,443
T47	4,049	13,050	19,307
T48	9,908	13,050	19,307
T49	1,516	1,574	1,546
T50	12,441	24,526	1,546
T51	12,441	1,574	26,204
T52	1,516	24,526	26,204
T53	12,441	24,526	26,204
T54	1,516	1,574	26,204
T55	1,516	24,526	1,546
T56	12,441	1,574	1,546
T57	1,516	14,624	15,421
T58	12,441	11,476	15,421
T59	12,441	14,624	12,329
T60	1,516	11,476	12,329
T61	12,441	11,476	12,329
T62	1,516	14,624	12,329
T63	1,516	11,476	15,421
T64	12,441	14,624	15,421
T65	8,494	1,574	15,421
T66	5,463	24,526	15,421
T67	5,463	1,574	12,329
T68	8,494	24,526	12,329
T69	5,463	24,526	12,329
T70	8,494	1,574	12,329
T71	8,494	24,526	15,421
T72	5,463	1,574	15,421
T73	8,494	14,624	1,546
T74	5,463	11,476	1,546
T75	5,463	14,624	26,204
T76	8,494	11,476	26,204
T77	5,463	11,476	26,204
T78	8,494	14,624	26,204
T79	8,494	11,476	1,546
T80	5,463	14,624	1,546
T81	0,000	5,086	7,648
T82	0,000	21,014	7,648
T83	0,000	5,086	20,102
T84	0,000	21,014	20,102

## ES 2 745 930 T3

T85	0,000	18,136	21,523
T86	0,000	7,964	21,523
T87	0,000	18,136	6,227
T88	0,000	7,964	6,227
T89	6,978	5,086	21,523
T90	6,978	21,014	21,523
T91	6,978	5,086	6,227
T92	6,978	21,014	6,227
T93	6,978	18,136	7,648
T94	6,978	7,964	7,648
T95	6,978	18,136	20,102
T96	6,978	7,964	20,102
T97	2,956	5,057	8,417
T98	11,001	21,043	8,417
T99	11,001	5,057	19,333
T100	2,956	21,043	19,333
T101	11,001	21,043	19,333
T102	2,956	5,057	19,333
T103	2,956	21,043	8,417
T104	11,001	5,057	8,417
T105	2,956	18,107	22,292
T106	11,001	7,993	22,292
T107	11,001	18,107	5,458
T108	2,956	7,993	5,458
T109	11,001	7,993	5,458
T110	2,956	18,107	5,458
T111	2,956	7,993	22,292
T112	11,001	18,107	22,292
T113	9,934	5,057	22,292
T114	4,023	21,043	22,292
T115	4,023	5,057	5,458
T116	9,934	21,043	5,458
T117	4,023	21,043	5,458
T118	9,934	5,057	5,458
T119	9,934	21,043	22,292
T120	4,023	5,057	22,292
T121	9,934	18,107	8,417
T122	4,023	7,993	8,417
T123	4,023	18,107	19,333
T124	9,934	7,993	19,333
T125	4,023	7,993	19,333
T126	9,934	18,107	19,333
T127	9,934	7,993	8,417
T128	4,023	18,107	8,417
T129	0,000	2,598	5,641
T130	0,000	23,502	5,641

T131	0,000	2,598	22,109
T132	0,000	23,502	22,109
T133	0,000	15,648	19,516
T134	0,000	10,452	19,516
T135	0,000	15,648	8,234
T136	0,000	10,452	8,234
T137	6,978	2,598	19,516
T138	6,978	23,502	19,516
T139	6,978	2,598	8,234
T140	6,978	23,502	8,234
T141	6,978	15,648	5,641
T142	6,978	10,452	5,641
T143	6,978	15,648	22,109
T144	6,978	10,452	22,109
T145	0,000	0,000	7,528
T146	0,000	0,000	20,222
T147	0,000	13,050	21,403
T148	0,000	13,050	6,347
T149	6,978	0,000	21,403
T150	6,978	0,000	6,347
T151	6,978	13,050	7,528
T152	6,978	13,050	20,222

5 La estructura completa de ITQ-27 se construye al conectar múltiples celdillas unitarias según se definen anteriormente en una disposición tridimensional totalmente conectada. Los átomos tetraédricos en una celdilla unitaria están conectados a ciertos átomos tetraédricos en todas sus celdillas unitarias adyacentes. Mientras que la **Tabla 1** lista las conexiones de todos los átomos tetraédricos para una celdilla unitaria dada de ITQ-27, las conexiones pueden no ser al átomo particular en la misma celdilla unitaria sino a una celdilla unitaria adyacente. Todas las conexiones listadas en la **Tabla 1** son tales que son a los átomos tetraédricos (T) más próximos, independientemente de si están en la misma celdilla unitaria o en celdillas unitarias adyacentes.

10 Anqué las coordenadas cartesianas dadas en la **Tabla 4** pueden reflejar exactamente las posiciones de átomos tetraédricos en una estructura idealizada, la estructura real se puede describir más exactamente por la conectividad entre los átomos de la disposición que se muestran en la **Tabla 1** anteriormente.

15 Otro modo de describir esta conectividad es mediante el uso de secuencias de coordinación como las aplicadas a disposiciones microporosas por W.M. Meier y H.J. Moeck, en the *Journal of Solid State Chemistry* **27**, p. 349 (1979). En una disposición microporosa, cada átomo tetraédrico,  $N_0$ , (átomos T) está conectado a  $N_1 = 4$  átomos T vecinos a través de átomos de puente (típicamente oxígeno). Estos átomos T próximos se conectan a continuación a átomos T  $N_2$  en la siguiente envuelta. Los átomos  $N_2$  en la segunda envuelta están conectados a átomos T  $N_3$  en la tercera envuelta, etc. Cada átomo T solo se cuenta una vez, de modo que, por ejemplo, si un átomo T es un anillo de 4 miembros, en la cuarta envuelta el átomo  $N_0$  no se cuenta por segunda vez, etc. Usando esta metodología, se puede determinar una secuencia de coordinación para cada átomo T único de una red tetraconectada de átomos T. La siguiente línea lista el número máximo de átomos T para cada envuelta.

25 
$$N_0 = 1 \quad N_1 \leq 4 \quad N_2 \leq 12 \quad N_3 \leq 36 \quad N_k \leq 4 \cdot 3^{k-1}$$

**Tabla 5**  
Secuencia de coordinación para la estructura de ITQ-27.

número de átomos	etiqueta del átomo	secuencia de coordinación
1	T (1)	4 12 20 32 50 74 101 135 167 203 254 307 347
2	T (2)	4 12 22 32 45 69 101 137 167 199 244 303 362
3	T (3)	4 9 18 32 52 78 105 130 164 213 264 310 350
4	T (4)	4 12 20 34 50 67 100 141 178 214 232 278 364

5	T (5)	4 11 21 34 49 72 101 138 177 204 243 292 353
6	T (6)	4 12 20 28 49 69 100 136 166 201 245 292 353
7	T (7)	4 12 24 32 40 66 108 136 168 196 240 298 368

Un modo de determinar la secuencia de coordinación para una estructura dada es a partir de las coordenadas atómicas de los átomos dispuestos usando el programa informático zeoTsites (véase G. Sastre, J.D. Gale, *Microporous and mesoporous Materials* **43**, p. 27 (2001).

5 La secuencia de coordinación para la estructura de ITQ-27 se da en. La conectividad de los átomos T que se lista en la **Tabla 1** y es para átomos T solamente. Los átomos de puente, tales como oxígeno, habitualmente conectan los átomos T. Aunque la mayoría de los átomos T están conectados a otros átomos T a través de átomos de puente, se sabe que en un cristal particular de un material que tiene una estructura dispuesta, es posible que un número de átomos T puedan no estar conectados entre sí. Razones para la falta de conectividad incluyen, pero no se limitan a, átomos T situados en los bordes de los cristales y por centros defectuosos provocados por, por ejemplo, vacantes en el cristal. La disposición listada en la **Tabla 1** y la Tabla 5 no se limita de ningún modo por su composición, dimensiones de las celdillas unitarias o simetría de los grupos espaciales.

15 Aunque la estructura idealizada contiene solamente átomos T tetracoordinados, es posible bajo ciertas circunstancias que algunos de los átomos dispuestos puedan estar penta- o hexacoordinados. Esto se puede producir, por ejemplo, bajo condiciones de hidratación cuando la composición del material contenga principalmente átomos T de fósforo y aluminio. Cuando esto ocurre, se encuentra que los átomos T también pueden estar coordinados a uno o dos átomos de oxígeno de moléculas de agua (-OH<sub>2</sub>) o de grupos hidroxilo (-OH). Por ejemplo, se sabe que el tamiz molecular AlPO<sub>4</sub>-34 cambia reversiblemente la coordinación de algunos átomos T de aluminio de tetracoordinado a penta- y hexacoordinado durante la hidratación según se describe por A. Tuel y cols. en *J. Phys. Chem. B* **104**, p. 5697 (2000). También es posible que algunos átomos T dispuestos se puedan coordinar a átomos de fluoruro (-F) cuando los materiales se preparan en presencia de fluoro para formar materiales como átomos T pentacoordinados según se describe por H. Koller en *J. Am. Chem. Soc.* **121**, p. 3368 (1999).

20 La invención también incluye un método para sintetizar una composición de silicato cristalino de ITQ-27 que tiene el patrón de difracción similar a la **Tabla 2** al mezclar entre sí una fuente de sílice, un agente que dirige la estructura (SDA) orgánico, agua y un metal opcional, X, con una composición, en cuanto a relaciones molares, dentro de los siguientes intervalos:

30	R/YO <sub>2</sub>	0,01-1
	H <sub>2</sub> O/YO <sub>2</sub>	2-50
	X/YO <sub>2</sub>	0-0,2

y preferiblemente dentro de los siguiente intervalos:

	R/YO <sub>2</sub>	0,1 – 0,5
	H <sub>2</sub> O/YO <sub>2</sub>	5 - 20
	X/YO <sub>2</sub>	0 – 0,1

35 y X es cualquier metal capaz de coordinación tetraédrica tal como uno o más de B, Ga, Al, Fe, Li, Be, P, Zn, Cr, Mg, Co, Ni, Mn, As, In, Sn, Sb, Ti y Zr, más preferiblemente uno o más metales trivalentes capaces de coordinación tetraédrica, y aún más preferiblemente uno o más de los elementos B, Ga, Al y Fe, e Y es Si solo o en combinación con cualquier otro metal tetravalente capaz de coordinación tetraédrica tal como Ge y Ti.

40 Dicho agente que dirige la estructura (SDA) orgánico es difenil-dimetil-fosfonio. Véase la FIGURA 1. Las fuentes de sílice pueden ser sílice coloidal, de pirólisis o precipitada, gel de sílice, silicatos de sodio o potasio, o silicio orgánico tal como ortosilicato de tetraetilo, etc. Fuentes de metal pueden ser ácido bórico, etóxido de germanio(IV), óxido de germanio, nitrato de germanio, nitrato de aluminio, aluminato sódico, sulfato de aluminio, hidróxido de aluminio, cloruro de aluminio y diversas sales de los metales X tales como nitrato de hierro, cloruro de hierro y nitrato de galio, etc. A continuación, la mezcla se calienta a una temperatura y un tiempo suficientes para cristalizar el silicato.

45 Hasta el grado deseado y dependiendo de la relación molar X<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/YO<sub>2</sub> del material, cualesquiera cationes presentes en el ITQ-27 según se sintetiza se pueden reemplazar según técnicas bien conocidas en la especialidad mediante intercambio iónico con otros cationes. Cationes de sustitución preferidos incluyen iones metálicos, iones hidrógeno y un precursor de hidrógeno, p. ej., iones amonio y sus mezclas. Cationes particularmente preferidos son los que adaptan la actividad catalítica para ciertas reacciones de conversión de hidrocarburos. Estos incluyen hidrógeno, metales de las tierras raras y metales de los Grupos IIA, IIIA, IVA, VA, IB, IIB, IIIB, IVB, VB, VIB, VIIB y VIII de la Tabla Periódica de los Elementos.

El material cristalino de esta invención se puede usar para catalizar una amplia variedad de procedimientos de conversión química, particularmente procedimientos de conversión de compuestos orgánicos, incluyendo muchos de actual importancia comercial/industrial. Ejemplos de procedimientos de conversión química que son catalizados eficazmente por el material cristalino de esta invención, por sí mismo o en combinación con una o más de otras sustancias catalíticamente activas incluyendo otros catalizadores cristalinos, incluyen los que requieren un catalizador con actividad catalítica.

Así, en su forma activa, el ITQ-27 puede exhibir una alta actividad ácida, que se puede medir con la prueba de la alfa. El valor alfa es una indicación aproximada de la actividad de craqueo catalítico del catalizador en comparación con un catalizador estándar y da la constante de velocidad relativa (velocidad de conversión de hexano normal por volumen de catalizador por unidad de tiempo). Se basa en la actividad de catalizador de craqueo de sílice-alúmina tomada como una alfa de 1 (Constante de velocidad=0,016 s<sup>-1</sup>). La prueba de la alfa se describe en la Pat. EE. UU. n° 3.354.078; en the *Journal of Catalysis* **4**, 527 (1965); **6**, 278 (1966); y **61**, 395 (1980), cada uno incorporado en la presente mediante referencia a esa descripción. Las condiciones experimentales de la prueba usada en la presente incluyen una temperatura constante de 538°C y un caudal variable según se describe con detalle en the *Journal of Catalysis* **61**, 395 (1980).

Cuando se usa como un catalizador, el material cristalino de la invención se puede someter a tratamiento para retirar parte o la totalidad de cualquier constituyente orgánico. Esto se efectúa convenientemente mediante tratamiento térmico en el que el material según se sintetiza se calienta a una temperatura de al menos aproximadamente 370°C durante al menos 1 minuto y generalmente no más de 20 horas. Aunque se puede emplear presión subatmosférica para el tratamiento térmico, se desea presión atmosférica por razones de comodidad. El tratamiento térmico se puede realizar a una temperatura de hasta aproximadamente 927°C. El producto tratado térmicamente, especialmente en sus formas metálica, hidrogenada y amónica, es particularmente útil en los catalizadores de ciertas reacciones de conversión orgánicas, p. ej. de hidrocarburos.

Cuando se usa como un catalizador, el material cristalino se puede combinar íntimamente con un componente hidrogenante tal como volframio, vanadio, molibdeno, renio, níquel, cobalto, cromo, manganeso o un metal noble tal como, pero no limitado a, platino o paladio, cuando se vaya a realizar una función de hidrogenación-deshidrogenación. Este componente puede estar en la composición por medio de cocristalización, intercambiado en la composición hasta el grado de que un elemento del Grupo IIIA, p. ej., aluminio, esté en la estructura, impregnado en la misma o mezclado físicamente de forma íntima con la misma. Este componente se puede impregnar en o sobre ella tal como, por ejemplo, en el caso del platino, al tratar ITQ-27 con una solución que contiene un ion que contiene platino metálico. Así, compuestos de platino adecuados para este propósito incluyen ácido cloroplatínico, cloruro platinoso y diversos compuestos que contienen el complejo aminado de platino.

El material cristalino de esta invención, cuando se emplea bien como un adsorbente o bien como un catalizador en un procedimiento de conversión de compuestos orgánicos, se debe deshidratar, al menos parcialmente. Esto se puede hacer al calentar hasta una temperatura en el intervalo de 100°C a aproximadamente 370°C en una atmósfera tal como aire, nitrógeno, etc., y a presiones atmosféricas, subatmosféricas o superatmosféricas durante entre 30 minutos y 48 horas. La deshidratación también se puede realizar a temperatura ambiente meramente al poner el ITQ-27 a vacío, pero se requiere un tiempo más prolongado para obtener una cantidad suficiente de deshidratación.

Como en el caso de muchos catalizadores, puede ser deseable incorporar el nuevo cristal con otro material resistente a las temperaturas y otras condiciones empleadas en procedimientos de conversión orgánica. Estos materiales incluyen materiales activos e inactivos y zeolitas sintéticas o naturales así como materiales inorgánicos tales como arcillas, sílice y/u óxidos metálicos tales como alúmina. Los últimos pueden ser bien naturales o bien estar en la forma de precipitados gelatinosos o geles incluyendo mezclas de sílice y óxidos metálicos. El uso de un material junto con el nuevo cristal, es decir, combinado con el mismo o presente durante la síntesis del nuevo cristal, que es activo, tiende a cambiar la conversión y/o la selectividad del catalizador en ciertos procedimientos de conversión orgánica. Los materiales inactivos sirven adecuadamente como diluyentes para controlar la cantidad de conversión en un procedimiento dado de modo que se pueden obtener productos económicamente y ordenadamente sin emplear otros medios para controlar la velocidad de reacción. Estos materiales se pueden incorporar en arcillas naturales, p. ej., bentonita y caolín, para mejorar la resistencia a la compresión del catalizador bajo condiciones operativas comerciales. Dichos materiales, es decir, arcillas, óxidos, etc., funcionan como aglutinantes para el catalizador. Es deseable proporcionar un catalizador que tenga buena resistencia a la compresión debido a que en el uso comercial es deseable evitar que el catalizador se rompa en materiales pulverulentos. Estos aglutinantes de arcilla y/u óxido se han empleado normalmente solo con el propósito de mejorar la resistencia a la compresión del catalizador.

Arcillas naturales que se pueden combinar con el nuevo cristal incluyen la familia de la montmorillonita y el caolín, familias que incluyen las subbentonitas, y los caolines comúnmente conocidos como arcillas de Dixie, McNamee, Georgia y Florida u otras en las que el principal constituyente mineral sea halloisita, caolinita, dickita, nacrita o anauxita. Estas arcillas se pueden usar en estado bruto según se extraen originalmente o se someten inicialmente a calcinación, tratamiento con ácido o modificación química. Aglutinantes útiles para combinar con el

presente cristal también incluyen óxidos inorgánicos, tales como sílice, circonia, titania, magnesia, berilia, alúmina y sus mezclas.

Además de los materiales precedentes, el nuevo cristal se puede combinar con un material de matriz poroso tal como sílice-alúmina, sílice-magnesia, sílice-circonia, sílice-toria, sílice-berilia, sílice-titania, así como composiciones ternarias tales como sílice-alúmina-toria, sílice-alúmina-circonia, sílice-alúmina-magnesia y sílice-magnesia-circonia.

Las proporciones relativas de material cristalino finamente dividido y matriz de óxido inorgánico varían ampliamente, variando el contenido de cristal de aproximadamente 1 a aproximadamente 90 por ciento en peso y más habitualmente, particularmente cuando el material compuesto se prepara en la forma de cuentas, en el intervalo de aproximadamente 2 a aproximadamente 80 por ciento en peso del material compuesto.

A fin de ilustrar más a fondo la naturaleza de la invención y el modo de poner en práctica la misma, se presentan los siguientes ejemplos.

## 15 **EJEMPLOS**

### **EJEMPLO 1: Síntesis de difenil-dimetil-fosfonio**

La plantilla de difenil-dimetil-fosfonio, según se muestra en la FIGURA 1, se obtuvo mediante metilación de difenilfosfina con yoduro de metilo en cloroformo en presencia de  $K_2CO_3$ . A continuación, se convirtió en el hidróxido correspondiente con una resina de intercambio aniónico discontinuamente durante la noche. Se disolvieron 10,80 g (0,058 mol) de difenilfosfina en 50 ml de isopropanol bajo atmósfera de nitrógeno (o en ausencia de agua). A continuación, se añadieron 9,55 g de sesquihidrato de carbonato potásico y la mezcla se agitó. Finalmente, se añadieron gota a gota 24,60 g (0,173 mol) de yoduro de metilo. Después de 48 horas, se añadieron de nuevo 8 g de yoduro de metilo y la mezcla se dejó durante un tiempo total de cinco días.

Usando métodos estándar, el isopropanol se eliminó y el sólido se lavó con cloroformo. A continuación, el producto se disolvió en cloroformo. El cloroformo se evaporó y el sólido se lavó con éter dietílico y se secó bajo vacío. Se obtuvieron 18,426 g de yoduro de difenil-dimetil-fosfonio (rendimiento de 93,2% en peso).

Estos 18,426 g de yoduro de difenil-dimetil-fosfonio, previamente disueltos en agua, se convirtieron en el hidróxido correspondiente con 58,15 g de una resina de intercambio aniónico discontinuamente durante la noche, dando 183,52 g de una solución 0,27 M de hidróxido de difenil-dimetil-fosfonio (92% de rendimiento de intercambio) que se usará como fuente de SDA.

### **EJEMPLO 2: Síntesis de ITQ-27**

La síntesis se llevó a cabo bajo condiciones hidrotérmicas en autoclaves de acero inoxidable revestidos con Teflon y agitación continua a partir de un gel de composición:



En esta síntesis, se hidrolizaron 9,73 g de ortosilicato de tetraetilo (TEOS) y 0,28 g de isopropóxido de aluminio en 86,01 g de solución de hidróxido de difenil-dimetil-fosfonio ( $Me_2Ph_2POH$ ) con una concentración de 0,27 mol/1000 g de solución. A continuación, la mezcla se agitó a temperatura ambiente hasta que los precursores de Si y Al estuvieran completamente hidrolizados y se alcanzara la concentración de gel. Finalmente, se añadieron 0,97 g de una solución de HF (48% en peso) y la mezcla se homogeneizó y se trató en autoclave a 150°C bajo agitación en tambor durante 64 días. El sólido recuperado mediante filtración, lavado con agua destilada y secado a (100°C) 373 K es ITQ-27 puro.

### **EJEMPLO 3: Síntesis de ITQ-27**

La síntesis de ITQ-27 se llevó a cabo al hidrolizar 0,32 g de isopropóxido de aluminio y 11,50 g de ortosilicato de tetraetilo (TEOS) en 95,04 g de hidróxido de difenil-dimetil-fosfonio ( $Me_2Ph_2P$ ) con una concentración de 0,29 mol/1000 g de solución. Esta mezcla se concentró bajo agitación y los alcoholes formados en la hidrólisis se evaporaron totalmente. Se añadieron 1,14 g de una solución de HF (48,1% en peso) y la mezcla se dejó bajo agitación hasta la evaporación completa del exceso de agua. Se añadieron cristales de siembra de ITQ-27 con una pequeña cantidad de material amorfo (5% en peso respecto a la sílice total de la mezcla). La composición del gel era:



55

## ES 2 745 930 T3

La mezcla se calentó bajo agitación en tambor en autoclaves de acero inoxidable revestidos con Teflon durante 48 días. El producto era ITQ-27 puro. La muestra se calcinó en aire hasta 580°C durante 3 horas.

5 El patrón de difracción de rayos X de este material según se elabora y se calcina se muestra en la FIGURA 3 y se da en la **Tabla 6** y la **Tabla 7**. La porosidad de la muestra de ITQ-27 calcinado se midió al adsorber nitrógeno y argón. Los resultados obtenidos son:

- Superficie específica Bet: 450 m<sup>2</sup>/g
- 10 • Área de microporos: 434 m<sup>2</sup>/g
- Microporo, volumen: 0,21 cm<sup>3</sup>/g
- Diámetro de los poros: 6,7 Å
- 15

**Tabla 6**  
Líneas de difracción de rayos X para ITQ-27 según se elabora

2 Zeta ± 0,2 (°)	Espaciamento d (Å)	I/Io (%)
6,45	13,69	94
6,96	12,69	25
7,98	11,07	100
9,47	9,34	17
12,64	7,00	12
12,86	6,88	31
14,36	6,17	18
18,19	4,87	83
18,80	4,72	39
18,96	4,68	30
19,48	4,55	9
19,85	4,47	41
20,91	4,24	82
21,83	4,07	58
23,23	3,83	75
24,59	3,62	66
25,42	3,50	45
25,78	3,45	64
26,24	3,39	21
26,58	3,35	96
27,81	3,21	24
29,32	3,04	25
30,03	2,97	17
32,18	2,78	16
35,68	2,51	11
38,92	2,31	8



**Tabla 7**  
Líneas de difracción de rayos X para ITQ-27 calcinado

2 Zeta $\pm$ 0,2 (°)	Espaciamiento d (Å)	I/I <sub>0</sub> (%)
6,40	13,79	100
7,01	12,59	13
8,01	11,04	78
9,49	9,31	11
12,76	6,93	11
12,89	6,86	11
18,17	4,88	52
19,00	4,67	73
19,94	4,45	17
21,04	4,22	60
22,06	4,03	38
23,18	3,83	57
24,68	3,60	58
25,42	3,50	13
25,71	3,46	32
25,92	3,43	13
26,41	3,37	11
26,68	3,34	60
27,99	3,18	18
29,32	3,04	15
30,00	2,98	8
32,17	2,78	7
35,43	2,53	14
35,98	2,49	7
37,73	2,38	7
38,49	2,34	10

## REIVINDICACIONES

1. Un material cristalino sintético que tiene una disposición de átomos tetraédricos (T) conectados por átomos de puente, definiéndose la disposición de átomos tetraédricos al conectar los átomos tetraédricos (T) más próximos del modo mostrado en la Tabla 1 posterior:

5

Tabla 1

Átomo T	Conectado a:
T1	T43, T49, T115, T129
T2	T44, T50, T116, T130
T3	T41, T51, T113, T131
T4	T42, T52, T114, T132
T5	T41, T53, T119, T132
T6	T42, T54, T120, T131
T7	T43, T55, T117, T130
T8	T44, T56, T118, T129
T9	T47, T57, T123, T133
T10	T48, T58, T124, T134
T11	T45, T59, T121, T135
T12	T46, T60, T122, T136
T13	T45, T61, T127, T136
T14	T46, T62, T128, T135
T15	T47, T63, T125, T134
T16	T48, T64, T126, T133
T17	T35, T65, T99, T137
T18	T36, T66, T100, T138
T19	T33, T67, T97, T139
T20	T34, T68, T98, T140
T21	T33, T69, T103, T140
T22	T34, T70, T104, T139
T23	T35, T71, T101, T138
T24	T36, T72, T102, T137
T25	T39, T73, T107, T141
T26	T40, T74, T108, T142
T27	T37, T75, T105, T143
T28	T38, T76, T106, T144
T29	T37, T77, T111, T144
T30	T38, T78, T112, T143
T31	T39, T79, T109, T142
T32	T40, T80, T110, T141
T33	T19, T21, T43, T145
T34	T20, T22, T44, T145
T35	T17, T23, T41, T146
T36	T18, T24, T42, T146

## ES 2 745 930 T3

T37	T27, T29, T47, T147
T38	T28, T30, T48, T147
T39	T25, T31, T45, T148
T40	T26, T32, T46, T148
T41	T3, T5, T35, T149
T42	T4, T6, T36, T149
T43	T1, T7, T33, T150
T44	T2, T8, T34, T150
T45	T11, T13, T39, T151
T46	T12, T14, T40, T151
T47	T9, T15, T37, T152
T48	T10, T16, T38, T152
T49	T1, T54, T55, T56
T50	T2, T53, T55, T56
T51	T3, T53, T54, T56
T52	T4, T53, T54, T55
T53	T5, T50, T51, T52
T54	T6, T49, T51, T52
T55	T7, T49, T50, T52
T56	T8, T49, T50, T51
T57	T9, T62, T63, T64
T58	T10, T61, T63, T64
T59	T11, T61, T62, T64
T60	T12, T61, T62, T63
T61	T13, T58, T59, T60
T62	T14, T57, T59, T60
T63	T15, T57, T58, T60
T64	T16, T57, T58, T59
T65	T17, T70, T71, T72
T66	T18, T69, T71, T72
T67	T19, T69, T70, T72
T68	T20, T69, T70, T71
T69	T21, T66, T67, T68
T70	T22, T65, T67, T68
T71	T23, T65, T66, T68
T72	T24, T65, T66, T67
T73	T25, T78, T79, T80
T74	T26, T77, T79, T80
T75	T27, T77, T78, T80
T76	T28, T77, T78, T79
T77	T29, T74, T75, T76

## ES 2 745 930 T3

T78	T30, T73, T75, T76
T79	T31, T73, T74, T76
T80	T32, T73, T74, T75
T81	T88, T97, T104, T129
T82	T87, T98, T103, T130
T83	T86, T99, T102, T131
T84	T85, T100, T101, T132
T85	T84, T105, T112, T133
T86	T83, T106, T111, T134
T87	T82, T107, T110, T135
T88	T81, T108, T109, T136
T89	T96, T113, T120, T137
T90	T95, T114, T119, T138
T91	T94, T115, T118, T139
T92	T93, T116, T117, T140
T93	T92, T121, T128, T141
T94	T91, T122, T127, T142
T95	T90, T123, T126, T143
T96	T89, T124, T125, T144
T97	T19, T81, T115, T122
T98	T20, T82, T116, T121
T99	T17, T83, T113, T124
T100	T18, T84, T114, T123
T101	T23, T84, T119, T126
T102	T24, T83, T120, T125
T103	T21, T82, T117, T128
T104	T22, T81, T118, T127
T105	T27, T85, T114, T123
T106	T28, T86, T113, T124
T107	T25, T87, T116, T121
T108	T26, T88, T115, T122
T109	T31, T88, T118, T127
T110	T32, T87, T117, T128
T111	T29, T86, T120, T125
T112	T30, T85, T119, T126
T113	T3, T89, T99, T106
T114	T4, T90, T100, T105
T115	T1, T91, T97, T108
T116	T2, T92, T98, T107
T117	T7, T92, T103, T110
T118	T8, T91, T104, T109

## ES 2 745 930 T3

T119	T5, T90, T101, T112
T120	T6, T89, T102, T111
T121	T11, T93, T98, T107
T122	T12, T94, T97, T108
T123	T9, T95, T100, T105
T124	T10, T96, T99, T106
T125	T15, T96, T102, T111
T126	T16, T95, T101, T112
T127	T13, T94, T104, T109
T128	T14, T93, T103, T110
T129	T1, T8, T81, T145
T130	T2, T7, T82, T145
T131	T3, T6, T83, T146
T132	T4, T5, T84, T146
T133	T9, T16, T85, T147
T134	T10, T15, T86, T147
T135	T11, T14, T87, T148
T136	T12, T13, T88, T148
T137	T17, T24, T89, T149
T138	T18, T23, T90, T149
T139	T19, T22, T91, T150
T140	T20, T21, T92, T150
T141	T25, T32, T93, T151
T142	T26, T31, T94, T151
T143	T27, T30, T95, T152
T144	T28, T29, T96, T152
T145	T33, T34, T129, T130
T146	T35, T36, T131, T132
T147	T37, T38, T133, T134
T148	T39, T40, T135, T136
T149	T41, T42, T137, T138
T150	T43, T44, T139, T140
T151	T45, T46, T141, T142
T152	T47, T48, T143, T144

2. El material cristalino según la reivindicación 1, en el que dichos átomos tetraédricos incluyen uno o más elementos seleccionados del grupo que consiste en Li, Be, Al, P, Si, Ga, Ge, Zn, Cr, Mg, Fe, Co, Ni, Mn, As, In, Sn, Sb, Ti y Zr.

5 3. El material cristalino según la reivindicación 1, en el que dichos átomos de puente incluyen uno o más elementos seleccionados del grupo que consiste en O, N, F, S, Se y C.

4. El material cristalino según la reivindicación 1, en la forma según se sintetiza, caracterizado por un patrón de difracción de rayos X que incluye los picos indicados en la Tabla 2 posterior:

10

Tabla 2

d(Å)	int. relativa (%)
14,1-13,3	60-100
13,1-12,3	5-50
11,4-10,8	80-100
6,99-6,77	20-70
4,93-4,82	60-100
4,77-4,67	20-70
4,73-4,63	20-70
4,51-4,42	20-70
4,29-4,21	60-100
4,11-4,03	30-80
3,86-3,79	50-90
3,65-3,59	30-80
3,53-3,47	20-70
3,48-3,43	30-80
3,42-3,37	5-50
3,38-3,33	60-100
3,23-3,18	5-50
3,06-3,02	5-50

5. El material cristalino según la reivindicación 4, en el que dicho material cristalino tiene una composición  $mR:aX_2O_3:YO_2 \cdot nH_2O$  donde R es un compuesto orgánico, X es uno o más metales seleccionados del grupo que consiste en B, Ga, Al y Fe, e Y es uno o más metales seleccionados del grupo que consiste en Si, Ge y Ti, y m, a y n son números reales menores que o iguales a 10.

10 6. El material cristalino según la reivindicación 1, en forma calcinada, caracterizado por un patrón de difracción de rayos X que incluye las líneas más significativas, según se indica en la Tabla 3 posteriormente:

Tabla 3

d(Å)	int. relativa (%)
14,2-13,4	80-100
11,3-10,8	50-90
4,93-4,83	30-80
4,72-4,62	50-90
4,49-4,41	5-40
4,26-4,18	30-80
4,06-3,99	20-70
3,87-3,80	30-80
3,63-3,58	30-80
3,49-3,44	20-70
3,36-3,31	30-80
3,21-3,16	5-40
3,06-3,02	5-40
2,545-2,518	5-40

15 7. El material calcinado según la reivindicación 6, en el que dicho material cristalino tiene una composición  $aX_2O_3:YO_2 \cdot nH_2O$  donde X es uno o más metales seleccionados del grupo que consiste en B, Ga, Al y Fe, e Y es uno o más metales seleccionados del grupo que consiste en Si, Ge y Ti, y a y n son números reales menores que o iguales a 10.

8. Un procedimiento para la separación de hidrocarburos de una corriente que contiene hidrocarburos usando cualquiera de los materiales según las reivindicaciones 1 a la reivindicación 7.

5 9. Un procedimiento para convertir un material de alimentación que comprende compuestos orgánicos en al menos un producto de conversión que comprende poner en contacto dicho material de alimentación en condiciones de conversión de compuestos orgánicos con un catalizador que comprende una forma activa de cualquiera de los materiales según las reivindicaciones 1 a la reivindicación 7.

10 10. El procedimiento para convertir un material de alimentación según la reivindicación 9, en el que el catalizador se combina con un metal hidrogenante.

15 11. El procedimiento para convertir un material de alimentación según la reivindicación 10, en el que dicho metal hidrogenante es uno o más metales seleccionados del grupo que consiste en volframio, vanadio, molibdeno, renio, níquel, cobalto, cromo, manganeso o un metal noble.

12. Un método para sintetizar el material cristalino según la reivindicación 4, al mezclar entre sí una fuente de sílice, un agente que dirige la estructura orgánico (R), agua y un metal (X) opcional, con una composición, en cuanto a las relaciones molares, dentro de los siguientes intervalos:

R / YO <sub>2</sub>	0,01 - 1
H <sub>2</sub> O / YO <sub>2</sub>	2 - 50
X / YO <sub>2</sub>	0 - 0,2

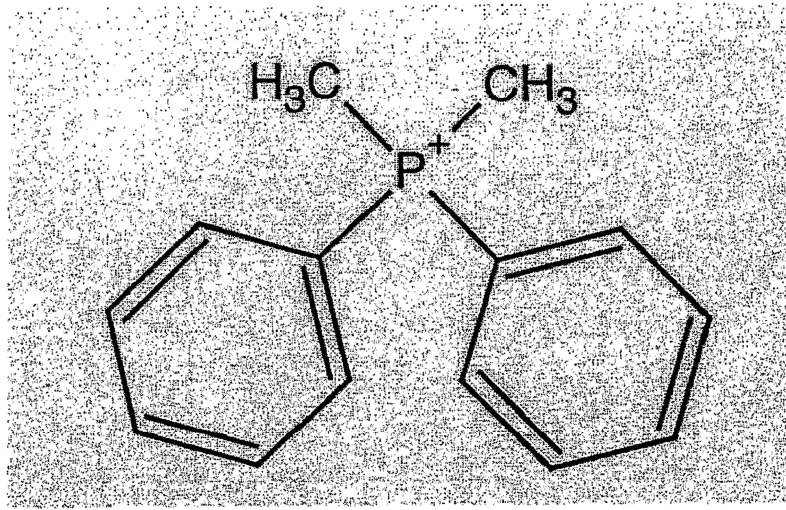
20 y en donde X es cualquier metal trivalente capaz de coordinación tetraédrica, Y es silicio y opcionalmente cualquier otro metal tetravalente capaz de coordinación tetraédrica, y dicho agente que dirige la estructura (SDA) orgánico es difenil-dimetil-fosfonio.

25 13. El método según la reivindicación 12, en el que X es uno o más metales seleccionados del grupo que consiste en B, Ga, Al, Fe, Li, Be, P, Zn, Cr, Mg, Co, Ni, Mn, As, In, Sn, Sb, Ti y Zr, e Y es silicio y puede incluir uno o más metales seleccionados del grupo que consiste en Ge y Ti, preferiblemente en donde X es uno o más metales seleccionados del grupo que consiste en B, Ga, Al o Fe.

30 14. El método según cualquiera de las reivindicaciones 12 a 13, en el que dichos intervalos de relaciones molares son

R/ YO <sub>2</sub>	0,1 - 0,5
H <sub>2</sub> O/ YO <sub>2</sub>	5 - 20
X/ YO <sub>2</sub>	0 - 0,1

FIGURA 1

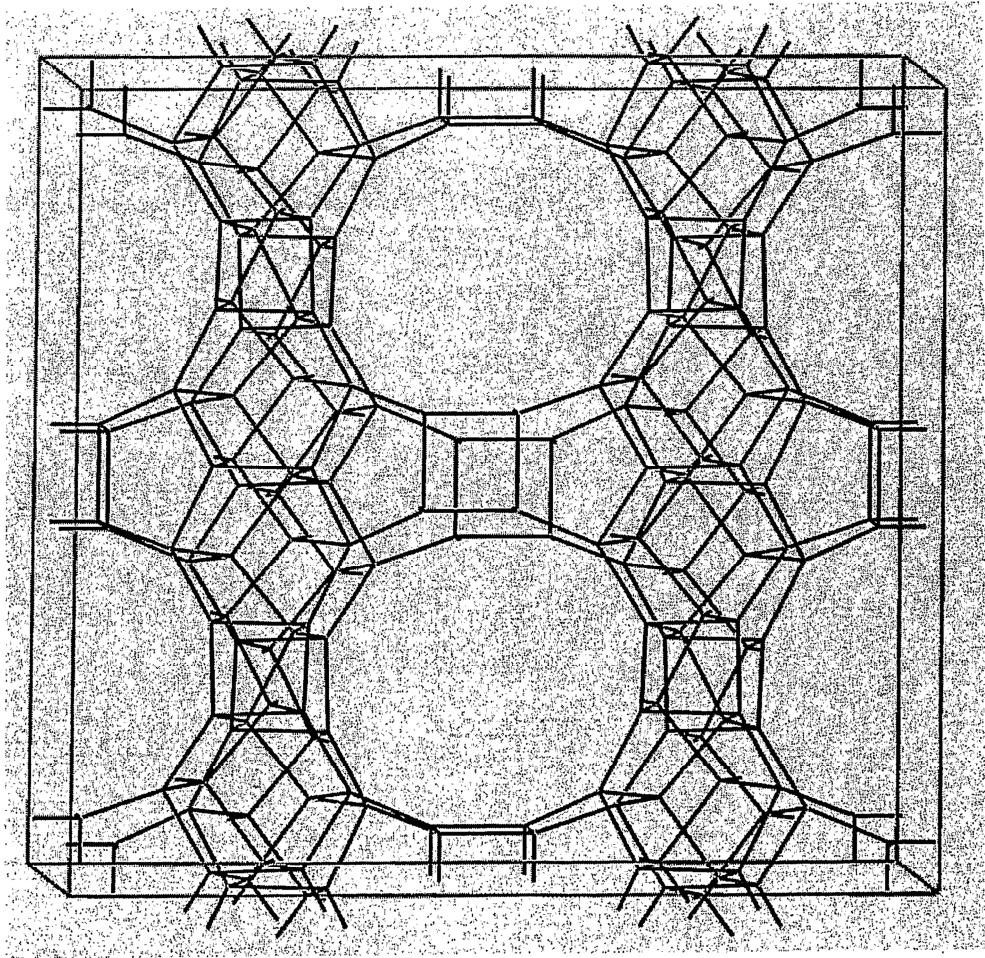


Difenil-Dimetil-Fosfonio



FIGURA 2

Estructura dispuesta de ITQ-27 que muestra solamente los átomos tetraédricos. Hay una sola celdilla unitaria, cuyos bordes están definidos por los cuadros grises.



**FIGURA 3**

Patrón de difracción de rayos X de ITQ-27 según se sintetiza y de ITQ-27 calcinado.

Patrón medido con geometría de reflexión usando radiación K $\alpha$  de Cu

