



República Federativa do Brasil
Ministério da Economia
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

(11) BR 112016028226-4 B1



(22) Data do Depósito: 03/06/2015

(45) Data de Concessão: 26/10/2021

(54) Título: PROCESSO PARA PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO, MATERIAL ZEOLÍTICO SINTÉTICO E USO DE MATERIAL ZEOLÍTICO SINTÉTICO

(51) Int.Cl.: C01B 39/48; B01J 29/72.

(30) Prioridade Unionista: 05/06/2014 EP 14171324.8.

(73) Titular(es): BASF SE.

(72) Inventor(es): MATHIAS FEYEN; JEFF YANG; ROGER RUETZ; ULRICH MÜLLER.

(86) Pedido PCT: PCT EP2015062377 de 03/06/2015

(87) Publicação PCT: WO 2015/185625 de 10/12/2015

(85) Data do Início da Fase Nacional: 30/11/2016

(57) Resumo: MATERIAIS ZEOLÍTICOS DO TIPO CHA E MÉTODOS PARA SUA PREPARAÇÃO PELO USO DE COMBINAÇÕES DE COMPOSTOS CICLOALQUILA E TETRAALQUILAMÔNIO A presente invenção diz respeito a um processo para preparação de um material zeolítico com uma estrutura em trelíça do tipo CHA compreendendo YO₂ e X₂O₃, dito processo caracterizado pelo fato de que compreende as etapas de: (1) prover uma mistura compreendendo uma ou mais fontes para YO₂, uma ou mais fontes para X₂O₃, um ou mais compostos contendo R₁R₂R₃R₄R₊ de cátions de tetraalquilamônio e um ou mais compostos contendo R₅R₆R₇R₈R₊ de cátions de tetraalquilamônio como agente de direcionamento de estrutura; (2) cristalizar a mistura obtida na etapa (1) a fim de obter um material zeolítico com uma estrutura em trelíça do tipo CHA; em que Y é um elemento tetravalente e X é um elemento trivalente, em que R₁, R₂, R₃, R₄, R₅, R₆ e R₇ estão, independentemente entre si, para alquila e em que R₈ está para cicloalquila. A invenção diz respeito, ainda, a materiais zeolíticos que podem ser obtidos conforme o processo da invenção e, por fim, ao uso destes materiais.

**“PROCESSO PARA PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO,
MATERIAL ZEOLÍTICO SINTÉTICO E USO DE MATERIAL
ZEOLÍTICO SINTÉTICO”**

CAMPO TÉCNICO

[0001] A presente invenção se refere a um processo para a preparação de um material zeolítico, bem como a um material zeolítico tendo uma estrutura em treliça do tipo CHA, como tal e obtêvel a partir do processo inventivo. Adicionalmente, a presente invenção se refere ao uso dos materiais zeolíticos inventivos em aplicações específicas.

INTRODUÇÃO

[0002] Peneiras moleculares são classificadas pela *Structure Commission of the International Zeolite Association* de acordo com as regras Comissão da IUPAC (União Internacional de Química Pura e Aplicada) para Nomenclatura de Zeólito. De acordo com essa classificação, zeólicas do tipo treliça e outras peneiras moleculares microporosas cristalinas, às quais uma estrutura foi estabelecida, são projetadas para um código de três letras e são descritas no *Atlas of Zeolite Framework Types* (Atlas de Tipos de Estruturas de Zeólita), 5º edição, Elsevier, Londres, Inglaterra (2001).

[0003] Entre referidos materiais zeolíticos, Chabazita é um exemplo bem estudado, em que é a representação clássica da classe de materiais zeolíticos com uma Estrutura de treliça de CHA. Apesar de aluminossilicatos, tal como Chabazite, a classe de materiais zeolíticos tendo uma estrutura de treliça de CHA compreende um grande número de compostos compreendendo adicionalmente fósforos na estrutura de treliça são conhecidos que são consequentemente referidos como silicoaluminofosfatos (SAPO). Em adição a referidos compostos, peneiras moleculares adicionais do tipo de estrutura de CHA são conhecidas por conter alumínio e fósforos em sua treliça, ainda contém um pouco ou nenhum sílica e são, consequentemente, referidas como um

aluminofosfato (APO). Materiais zeolíticos pertencentes à classe de peneiras moleculares com a estrutura em treliça do tipo CHA são empregados em uma variedade de aplicações e, em particular, servem como catalisadores heterogêneos em uma ampla variedade de reações, tal como em catálise de metanol para olefina e redução catalítica seletiva de óxidos de nitrogênio NO_x para citar duas das aplicações mais importantes. Materiais zeolíticos do tipo de treliça de CHA são caracterizados por sistemas de canal/poro de anel de 8 membros (8MR) tridimensional contendo seis anéis duplos (D6R) e carcaças.

[0004] Materiais zeolíticos com uma estrutura em treliça do tipo CHA e, em particular, chabazita com íons de cobre incorporados (Cu-CHA) são amplamente usados como catalisador heterogêneo para a redução catalítica seletiva (SCR) de frações de NO_x em emissões automotivas. Com base nas aberturas de poro pequenas e no alinhamento dos íons de cobre nas carcaças de CHA, esses sistemas catalisadores têm uma estabilidade térmica única, que tolera temperaturas mais altas do que 700°C na presença de H₂O.

[0005] Para a produção industrial de CHA, 1-hidróxido de adamanto trimetil amônia entre outros modelos orgânicos custosos são tipicamente empregados como agente de direcionamento de estrutura nos procedimentos sintéticos para sua preparação. US 4.544.538, por exemplo, se refere à produção de SSZ-13 usando 1N-alquil-3-quinuclidinol, N,N,N-tetraalquil-1-adamantâmônio ou N,N,N-trialquil-exo-aminonorbornano como o agente de direcionamento de estrutura, o material zeolítico SSZ-13 com uma estrutura em treliça do tipo CHA.

[0006] WO-A-2008/083048, por outro lado, se refere a um método para a produção de SSZ-13 usando um cátion de amônia quaternária de N,N,N-trimetil benzil específico na presença de germes cristalinos. Similarmente, WO-A-2008/039742 se refere a um método para a produção de SSZ-13 em que uma mistura de cátions de amônia quaternária de N,N,N-trialquil benzil e N,N,N-

tetrametil-1-adamantâmônio são empregados como o modelo orgânico em um esforço para aumentar eficácia em custo ao tentar reduzir a quantidade do N,N,N-tetrametil-1-adamantâmônio intenso em custo geralmente empregado na síntese de SSZ-13.

[0007] WO-A-2008/033229 se refere a um método para a produção de materiais microporosos usando compostos de dicicloalquilâmônia como agentes de modelo orgânico.

[0008] WO 2009/141324 A1 se refere a um método para a síntese direta de zeólitos contendo Cu com a estrutura de treliça de CHA, em que referidas menções de documento de compostos de N,N,N-trimetilciclohexilâmônia entre vários compostos como possíveis agentes de direcionamento de estrutura para obter um material zeolítico com a estrutura de treliça de CHA. Além disso, referido documento ensina o uso de um composto de 1-adamantiltrimetilâmônio em combinação com um composto de amônia adicional, que pode ser um composto de tetrametilâmônia.

[0009] WO 2011/064186 A1 e EP 2 325 143 A2, por outro lado, se refere respectivamente a um processo para a preparação de zeólitos com a estrutura de treliça de CHA que emprega hidróxido de tetrametilâmônia em adição ao pelo menos um agente orgânico de direcionamento de estrutura. Entre os agentes de direcionamento de estrutura que podem ser usados para esse efeito, referida menção de documentos de compostos de N,N,N-trimetilciclohexilâmônio entre vários compostos como possíveis agentes de direcionamento de estruturas para obter um material zeolítico com a estrutura de treliça de CHA, em que, no entanto, compostos de N,N,N-trimetil-1-adamantiotrimetilâmônio são preferencialmente e efetivamente ensinados em referidos documentos para obter o material mencionado acima.

[0010] US 4.610.854 divulga o uso de trimetilciclohexilâmônio para a produção de SSZ-15, que é um material zeolítico exibindo uma outra estrutura

de treliça além daquela de tipo CHA. US-A-2007/0043249, por outro lado, se refere ao uso de um grupo de compostos de tetra-alquilamônio, incluindo trimetilciclohexilamônio como modelos orgânicos para a produção de materiais zeolíticos com a estrutura de treliça de CHA, em que referidos materiais são, no entanto, restritos a alumino- ou silicoaluminofosfatos contendo necessariamente P₂O₅ em suas respectivas treliças.

[0011] Zones et al. “*A Study of Guest/Host Energetics for the Synthesis of Cage Structures NON and CHA*” em *Studies in Surface Science and Catalysis*, Vol. 84, página 29-36, Elsevier Science B.V. (1994) descreve a síntese de SSZ-13 usando uma variedade de modelos orgânicos incluindo o cátion de trimetilciclohexilamônio, em que o ultimo deveria exibir taxas muito baixas de cristalização, em particular, quando comparadas ao uso do cátion de adamantiotrimetilamônio. WO 2013/182974 A se refere ao uso de hidróxido de trimetilciclohexilamônio, como modelo orgânico para a síntese de Materiais zeolíticos do tipo CHA envolvendo tempo de cristalização de 48 horas ou mais.

[0012] Consequentemente, permanece uma necessidade por um processo efetivo em custo para a produção de materiais zeolíticos com a estrutura em treliça do tipo CHA. Além disso, permanece o surgimento de uma necessidade por materiais zeolíticos aprimorados tendo a estrutura em treliça do tipo CHA, em particular com relação às propriedades catalíticas para uso em uma variedade de aplicações e em particular para uso no tratamento de NO_x em gás de exaustão catalítico um catalisador e/ou suporte de catalisador. Isso se aplica, em particular, em vista de política ambiental e legislação nacional que exige efetividade crescente de catalisadores ambientais, tais como Cu-Chabazita e materiais zeolíticos relacionados.

DESCRÍÇÃO DETALHADA

[0013] É, portanto, o objetivo da presente invenção prover um material zeolítico do tipo CHA aprimorado, bem como prover um método para a

produção de tal catalisador, em particular em vista de efetividade em custo. Assim, foi constatado que um zeólito do tipo CHA aprimorado pode ser obtido ao usar combinações específicas de compostos de cicloalquilamônio como modelos orgânicos nos procedimentos sintéticos autoorganizantes típicos da química de zeólito. Assim, foi constatado que apesar de prover um processo aprimorado para a produção de referidos materiais zeolíticos, em particular, com relação ao aumento considerável em efetividade em custo que pode ser atingida em vista dos tempos de reação reduzidos necessários de acordo com o processo inventivo, os materiais zeolíticos resultantes, per se, exibem propriedades altamente importantes em comparação aos produtos de síntese apenas empregando um cicloalquilamônio ou outro agente orgânico de direcionamento de estrutura sozinho. Isso se aplica não apenas com relação às propriedades físicas e químicas únicas dos materiais obtidos de acordo com o processo inventivo, mas em particular com relação às suas propriedades altamente importantes catalíticas, e mais especificamente em vista de sua atividade em aplicações catalíticas de SCR.

[0014] Portanto, a presente invenção se refere a um processo para a preparação de um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA compreendendo YO_2 e X_2O_3 , em que referido processo compreende as etapas de:

(1) prover uma mistura compreendendo uma ou mais fontes para YO_2 , uma ou mais fontes para X_2O_3 , um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $\text{R}^1\text{R}^2\text{R}^3\text{R}^4\text{N}^+$ e um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $\text{R}^5\text{R}^6\text{R}^7\text{R}^8\text{N}^+$ como agente de direcionamento de estrutura;

(2) cristalizar a mistura obtida na etapa (1) para obter um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA; em que Y é um elemento tetravalente e X é um elemento trivalente,

em que R¹, R², R³, R⁴, R⁵, R⁶ e R⁷, independentes entre si, representam alquil, e

em que R⁸ representa cicloalquil.

[0015] Assim, foi constatado que ao usar uma combinação específica de um cátion de cicloalquilamônio como agente de direcionamento de estrutura e um cátion de tetra-alquilamônio de acordo com o processo inventivo, um processo altamente efetivo em custo é provido, em que, é ainda mais notável que referido processo aprimorado realmente leve a um material zeolítico aprimorado com a estrutura em treliça do tipo CHA em comparação com os materiais obtidos ao usar o cátion de cicloalquilamônio sozinho ou outros modelos orgânicos, tanto sozinhos como em combinação com um cátion de tetra-alquilamônio em seus respectivos procedimentos sintéticos. Isso é particularmente aparente a partir das propriedades físicas e químicas diferentes obtidas para os materiais resultantes que claramente se distinguem daqueles conhecidos a partir do estado da técnica, em particular, em vista do desempenho visivelmente aprimorado dos catalisadores inventivos em comparação com os últimos materiais quando usados em aplicações de SCR, o que constitui um campo técnico consideravelmente importante em que materiais zeolíticos do tipo CHA são empregados.

[0016] De acordo com a presente invenção, é preferível que o processo inventivo, a mistura provida na etapa (1) não contenha qualquer quantidade substancial de uma fonte para Z₂O₅, em que Z é P. Dentro do significado da presente invenção, o termo “substancial”, com relação à quantidade de uma fonte para Z₂O₅ sendo contida na mistura provida na etapa (1) e cristalizada na etapa (2) de acordo com modalidades particulares e preferenciais do processo inventivo, indica preferencialmente uma quantidade de 5 % em peso ou menos para Z₂O₅ contido em uma fonte para Z₂O₅ e com base em 100 % em peso para YO₂ contido na uma ou mais fontes para YO₂, e

mais preferencialmente indica uma quantidade de 1 % em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,5 % em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,1% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,05% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,01% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,005% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,001% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,0005% em peso ou menos, e ainda mais preferencialmente de 0,0001% em peso ou menos de Z₂O₅ contido em uma fonte para Z₂O₅ com base em 100% em peso de YO₂ contido na uma ou mais fontes para YO₂.

[0017] De acordo com a presente invenção é adicionalmente preferencial que Z represente P e As, em que mais preferencialmente Z seja qualquer elemento pentavalente que se já uma fonte para Z₂O₅ na estrutura de treliça CHA cristalizada na etapa (2).

[0018] De acordo com o processo de invenção, uma ou mais fontes para YO₂ são providas na etapa (1), em que referida uma ou mais fontes podem ser providas em qualquer forma concebível considerando que um material zeolítico compreendendo YO₂ e X₂O₃ e com a estrutura em treliça do tipo CHA é cristalizado na etapa (2). Preferencialmente, YO₂ é provido tal como e/ou tem um composto que comprehende YO₂ como uma metade química e/ou como um composto que (parcialmente ou inteiramente) é quimicamente transformado para YO₂ durante o processo inventivo.

[0019] Com relação ao YO₂ e/ou precursores do mesmo empregados no processo inventivo, não há restrição particular a um ou mais elementos que Y representa, considerando que referido elemento é um elemento tetravalente e que é compreendido no material zeolítico cristalizado na etapa (2). Em particular, dentro do significado da presente invenção, YO₂ é pelo menos parcialmente e preferencialmente totalmente compreendido na estrutura de treliça do material zeolítico como elemento de construção de estrutura, em

oposição aos elementos não de treliça que podem estar presentes nos poros e cavidades formadas pela estrutura de treliça e típica para materiais zeolíticos em geral. Assim, considerando o mencionado acima, Y pode representar qualquer elemento tetravalente concebível, Y representando tanto um único ou vários elementos tetravalentes. Elementos tetravalentes preferenciais, de acordo com a presente invenção, incluem Si, Sn, Ti, Zr, Ge, bem como combinações de dois ou mais dos mesmos. De acordo com modalidades preferenciais da presente invenção, Y representa Si e/ou Sn, em que, de acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, Y compreende Si e ainda mais preferencialmente Y é Si.

[0020] Em modalidades preferenciais da presente invenção, em que Y representa Si ou para uma combinação de Si com um ou mais elementos tetravalentes adicionais, a fonte para SiO_2 preferencialmente provida na etapa (1) também podem ser qualquer fonte concebível. Assim, para fins de exemplo, quaisquer tipos de sílicas e/ou silicatos e/ou derivados de sílica podem ser usados, em que preferencialmente a uma ou mais fontes para YO_2 compreendem um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em sílica fumada, hidrossóis de sílica, sílicas sólidas amorfas reativas, sílica gel, ácido silícico, água vítreia, hidrato de metassilicato de sódio, sesquissilicato, dissilicato, sílica coloidal, sílica pirogênica, ésteres de ácido silícico ou misturas de quaisquer dois ou mais dos compostos mencionados acima podem ser igualmente usados. De acordo com modalidades particularmente preferenciais, a uma ou mais fontes para YO_2 usadas na etapa (1) do processo inventivo são selecionados a partir do grupo consistindo em sílica fumada, hidrossóis de sílica, sílicas sólidas amorfas reativas, sílica gel, ácido silícico, sílica coloidal, ésteres de ácido silícico e misturas de dois ou mais dos mesmos. De acordo com referidas modalidades particularmente preferenciais, é adicionalmente preferencial que a uma ou mais fontes para YO_2 são selecionadas a partir do

grupo consistindo em sílica fumada, hidrossóis de sílica, sílicas sólidas amorfas reativas, sílica gel, sílica coloidal e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que, ainda mais preferencialmente, de acordo com o processo inventivo, a uma ou mais fontes para YO₂ compreendem sílica fumada e/ou sílica coloidal, preferencialmente sílica coloidal.

[0021] Com relação ao um ou mais cátions de tetra-alquilamônios, R¹R²R³R⁴N⁺ adicionalmente provido na mistura de acordo com a etapa (1) do processo inventivo, não há restrição particular quanto ao tipo e/ou quantidade do mesmo considerando que R¹, R², R³ e R⁴, independentes entre si, representam alquil, considerando que o tipo e/ou quantidade do mesmo seja provida na etapa (1) permite uma cristalização de um material zeolítico com a estrutura em treliça do tipo CHA na etapa (2). Assim, com relação às metades de alquil R¹, R², R³ e R⁴ do um ou mais cátions de tetra-alquilamônios R¹R²R³R⁴N⁺ providos na etapa (1) do processo inventivo, esses podem ser, para fins de exemplo, independentes entre si, representar alquil (C₁-C₆) opcionalmente substituído e/ou opcionalmente ramificado. De acordo com a presente invenção, R¹, R², R³ e R⁴ podem ser os mesmos, ou dois de R¹, R², R³ e R⁴ podem ser os mesmos e um diferente dos outros, ou R¹, R², R³ e R⁴ podem ser todos diferentes entre si, em que é preferencial que pelo menos dois dentre R¹, R², R³ e R⁴ são as mesmas metades de alquil, e mais preferencialmente pelo menos três dentre R¹, R², R³ e R⁴ são as mesmas metades alquil, e em que ainda mais preferencialmente R¹, R², R³ e R⁴ são as mesmas metade alquil de acordo com as modalidades particulares da presente invenção. Com relação às modalidades preferenciais da presente invenção, R¹, R², R³ e R⁴, independentes entre si, representam alquil (C₁-C₅) opcionalmente substituído e/ou opcionalmente ramificado, em que mais preferencialmente R¹, R², R³ e R⁴ são, independentes entre si, selecionados a partir do grupo consistindo em alquil (C₁-C₄), mais preferencialmente alquil (C₁-C₃), em que ainda mais preferencialmente R¹, R², R³ e R⁴,

independentemente formam outro, representam opcionalmente metil ou etil substituído. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, pelo menos um, preferencialmente dois, mais preferencialmente três, e ainda mais preferencialmente todos os R¹, R², R³ e R⁴ representam metil opcionalmente substituído, preferencialmente metil não substituído.

[0022] Portanto, no que se refere a um ou mais cátions de tetra-alquilamônios R¹R²R³R⁴N⁺ providos adicionalmente na mistura de acordo com a etapa (1) do processo inventivo, é preferencial de acordo com a presente invenção que R¹, R², R³ e R⁴, independentes entre si, representem alquil (C₁-C₆) opcionalmente substituído e/ou opcionalmente ramificado, preferencialmente alquil (C₁-C₅), mais preferencialmente alquil (C₁-C₄), mais preferencialmente alquil (C₁-C₃) e ainda mais preferencialmente metil opcionalmente substituído ou etil, em que ainda mais preferencialmente R¹, R², R³ e R⁴ representam metil opcionalmente substituído, preferencialmente metil não substituído.

[0023] Além disso, é preferencial de acordo com o processo inventivo que o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R¹R²R³R⁴N⁺ compreendam um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em compostos de tetra(C₁-C₆)alquilamônio, preferencialmente compostos de tetra(C₁-C₅)alquilamônio, mais preferencialmente compostos de tetra(C₁-C₄)alquilamônio e mais preferencialmente compostos de tetra(C₁-C₃)alquilamônio, em que, independentes entre si, os substituintes de alquil são opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados. Mais preferencialmente, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R¹R²R³R⁴N⁺ são selecionados a partir do grupo consistindo em compostos de tetrapropilamônio, compostos de etiltripropilamônio, compostos de dietildipropilamônio, compostos de trietilpropilamônio, compostos de etiltripropilamônio, compostos de dimetildipropilamônio, compostos de

trimetilpropilamônio, compostos de tetraetilamônio, compostos de trietilmelilamônio, compostos de dietildimetilamônio, compostos de etiltrimetilamônio, compostos de tetrametilamônio, opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados e misturas de dois ou mais dos mesmos, e preferencialmente a partir do grupo consistindo em compostos de tetraetilamônio, compostos de trietilmelilamônio, compostos de dietildimetilamônio, compostos de etiltrimetilamônio, compostos de tetrametilamônio, opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados e misturas de dois ou mais dos mesmos. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ são selecionados a partir do grupo consistindo em compostos de tetrametilamônio opcionalmente substituídos, em que mais preferencialmente ou um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ compreendem um ou mais compostos de tetrametilamônio, e em que mais preferencialmente o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ consistem em um ou mais compostos de tetrametilamônio.

[0024] De acordo com a presente invenção, não há restrição particular quanto ao tipo do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônios $R^1R^2R^3R^4N^+$ que podem ser providos na etapa (1) do processo inventivo considerando que o um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^1R^2R^3R^4N^+$ contidos podem agir como agente de direcionamento de estrutura mediante cristalização da mistura de reação na etapa (2) do processo inventivo. De acordo com as modalidades preferenciais, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônios $R^1R^2R^3R^4N^+$ contém um ou mais sais. Em princípio, de acordo com as referidas modalidades preferenciais, não há restrição particular quando ao contra-íon para o um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^1R^2R^3R^4N^+$, novamente considerando que eles permitem a cristalização de um

material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA na etapa (2) do processo inventivo pela ação de direcionamento de estrutura de um ou mais dos cátions de tetra-alquilamônios $R^1R^2R^3R^4N^+$ mencionados acima. Assim, para fins de exemplo, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ podem compreender um ou mais sais selecionados a partir de haletos, hidróxidos, sulfatos, nitratos, fosfatos, acetatos e misturas de dois ou mais dos mesmos. Com relação aos sais de haleto, eles são preferencialmente sais de cloreto e/ou brometo, em que ainda mais preferencialmente sais de cloreto são empregados. De acordo com modalidades preferenciais da presente invenção, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ compreendem um ou mais sais selecionados a partir do grupo consistindo em cloretos, hidróxidos, sulfatos e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ são hidróxidos e/ou cloretos de tetra-alquilamônio. De acordo com as modalidades particularmente preferenciais, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônios $R^1R^2R^3R^4N^+$ são providos na medida em que seus sais de hidróxido na etapa (1) do processo inventivo.

[0025] Assim, de acordo com as modalidades particularmente preferenciais do processo inventivo, que são adicionalmente preferenciais, ou um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ providos na etapa (1) compreendem um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em hidróxidos de tetra(C_1-C_6)alquilamônio, preferencialmente hidróxidos de tetra(C_1-C_5)alquilamônio, mais preferencialmente hidróxidos de tetra(C_1-C_4)alquilamônio e mais preferencialmente hidróxidos de tetra(C_1-C_3)alquilamônio, em que, independentes entre si, os substituintes de alquil são opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados, em que é adicionalmente preferencial que o um

ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ são selecionados a partir do grupo consistindo em hidróxido de tetrapropilamônio, hidróxido de etiltripropilamônio, hidróxido de dietildipropilamônio, hidróxido de trietylpropilamônio, hidróxido de metiltripropilamônio, hidróxido de dimetildipropilamônio, hidróxido de trimetildipropilamônio, hidróxido de tetraetilamônio, hidróxido de triethylmetilamônio, hidróxido de dietildimetilamônio, hidróxido de etiltrimetilamônio, hidróxido de tetrametilamônia, opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados e misturas de dois ou mais dos mesmos. É adicionalmente preferencial que o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ sejam selecionados a partir do grupo consistindo em hidróxido de tetraetilamônio, hidróxido de triethylmetilamônio, hidróxido de dietildimetilamônio, hidróxido de etiltrimetilamônio, hidróxido de tetrametilamônia, opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados e misturas de dois ou mais dos mesmos. De acordo com modalidades da presente invenção que são ainda mais preferenciais, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ compreendem hidróxido de tetrametilamônia opcionalmente substituído, em que ainda mais preferencialmente os compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ providos na etapa (1) são hidróxido de tetrametilamônia.

[0026] Com relação ao um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ providos adicionalmente na mistura, de acordo com a etapa (1) do processo inventivo, não há restrição particular quanto ao tipo e/ou quantidade dos mesmos considerando que R^5 , R^6 e R^7 , independentes entre si, representam alquil e R^8 representa uma metade cicloalquil, considerando que o tipo e/ou quantidade do mesmo, que é provido na etapa (1) permite a cristalização de um material zeolítico com a estrutura em treliça do tipo CHA na etapa (2). Assim, com relação às metades alquil R^5 , R^6 e R^7 do um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ providos na etapa (1) do processo inventivo, elas

podem, para fins de exemplo, independentes entre si, representar alquil (C₁-C₆) opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados. De acordo com a presente invenção, R⁵, R⁶ e R⁷ podem ser os mesmos, ou dois de R⁵, R⁶ e R⁷ podem ser os mesmos e um diferente dos outros, ou R⁵, R⁶ e R⁷ podem ser diferentes entre si, em que é preferencial que pelo menos dois dentre R⁵, R⁶ e R⁷ são as mesmas metades alquil, e em que ainda mais preferencialmente R⁵, R⁶ e R⁷ são as mesmas metades alquil de acordo com modalidades particulares da presente invenção. Com relação às modalidades preferenciais da presente invenção, R⁵, R⁶ e R⁷ independentes entre si, representam alquil (C₁-C₅) opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados, em que mais preferencialmente R⁵, R⁶ e R⁷ são, independentes entre si, selecionados a partir do grupo consistindo em alquil (C₁-C₄), mais preferencialmente alquil (C₁-C₃), em que ainda mais preferencialmente R⁵, R⁶ e R⁷, independentemente, formam entre si para representar metil opcionalmente substituído ou etil. De acordo com as modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, pelo menos um, preferencialmente dois, e ainda mais preferencialmente todos dentre R⁵, R⁶ e R⁷ representam metil opcionalmente substituído, preferencialmente metil não substituído.

[0027] Portanto, no que se refere a um ou mais cátions de tetra-alquilamônios R⁵R⁶R⁷R⁸N⁺ adicionais providos na mistura, de acordo com a etapa (1) do processo inventivo, é preferencial de acordo com a presente invenção que R⁵, R⁶ e R⁷, independentes entre si, representam alquil (C₁-C₆) opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados, preferencialmente alquil (C₁-C₅), mais preferencialmente alquil (C₁-C₄), mais preferencialmente alquil (C₁-C₃), e ainda mais preferencialmente metil opcionalmente substituído ou etil, em que ainda mais preferencialmente R⁵, R⁶ e R⁷ representam metil opcionalmente substituído, preferencialmente metil não substituído.

[0028] Com relação à metade cicloalquil R⁸ do um ou mais cátions

de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ providos na etapa (1) do processo inventivo, R^8 pode representar qualquer grupo cicloalquil adequado e é preferencialmente cicloalquil selecionado a partir do grupo consistindo opcionalmente em cicloalquil heterocíclico e/ou opcionalmente substituído. Com relação ao número de membros de cadeia formando a metade cicloalquil opcionalmente heterocíclica, nenhuma restrição particular se aplica com relação a isso de acordo com a presente invenção, considerando que um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA pode ser cristalizado na etapa (2) do processo inventivo. Assim, para fins de exemplo, a metade cicloalquil opcionalmente heterocíclica pode ser formada a partir de qualquer número adequado de membros de cadeia, em que é preferencial que a metade de anel seja formada a partir de cicloalquil de 5 a 8 membros opcionalmente heterocíclico, mais preferencialmente cicloalquil de 5 a 7 membros, mais preferencialmente cicloalquil de 5 ou 6 membros, em que ainda mais preferencialmente o cicloalquil opcionalmente heterocíclico é um cicloalquil de 6 membros. Com relação às metades pelas quais as metades de cicloalquil opcionalmente heterocíclico, de acordo com a presente invenção, podem ser substituídas, novamente não há nenhuma restrição particular com relação a isso, considerando que um material zeolítico com uma estrutura de treliça do tipo CHA pode ser cristalizada na etapa (2). Assim, para fins de exemplo, o um ou mais substituintes opcionais da metade opcionalmente heterocíclica pode ser selecionado a partir do grupo consistindo em alquil (C_1-C_3), alcoxi (C_1-C_3), hidroxil, haletos, carboxil (C_1-C_3), carbonil (C_1-C_3), amina (C_1-C_3) e combinações de dois ou mais dos mesmos, preferencialmente a partir do grupo consistindo em alquil (C_1-C_2), alcoxi (C_1-C_2), hidroxil, cloro, bromo, flúor e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em metil, hidroxil, cloro e combinações de dosi ou mais dos mesmos, em que ainda mais preferencialmente, o um ou mais substituintes opcionais são metil e/ou hidroxo,

preferencialmente metil. Com relação ao número de substituintes que estão presentes na metade cicloalquil opcionalmente heterocíclica de acordo com modalidades particulares da presente invenção, seu número pode variar em qualquer um entre 1 a 4, em que preferencialmente a partir de 1 a 3 substituintes estão presentes no cicloalquil opcionalmente heterocíclico, mais preferencialmente 1 ou 2, em que ainda mais preferencialmente um substituinte está presente na metade cicloalquil opcionalmente heterocíclica de R⁸ de acordo com as modalidades particulares da presente invenção. De acordo com a presente invenção, no entanto, é particularmente preferencial que R⁸ representa cicloalquil opcionalmente heterocíclico que é não-substituído, e ainda mais preferencialmente ciclohexil.

[0029] Com relação ao heteroátomo que pode estar presente nas modalidades da presente invenção em que R⁸ é um cicloalquil heterocíclico opcionalmente substituído, nenhuma restrição particular se aplica de acordo com a presente invenção, nem com relação ao tipo de heteroátomos que podem estar presentes na metade cicloalquil heterocíclico, ne com relação ao seu número, considerando que um material zeolítico com a estrutura em treliça do tipo CHA pode ser cristalizado na etapa (2). Assim, para fins de exemplo, o um ou mais heteroátomos compreendidos no cicloalquil heterocíclico podem compreender um ou mais elementos selecionados a partir do grupo consistindo em N, O, S, Se, P, Cl, Br, I e combinações de dois ou mais dos mesmos, em que preferencialmente o um ou mais heteroátomos compreendem um ou mais elementos selecionados a partir do grupo consistindo em N, O, S, Se, P e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em N, O, S e combinações de dois ou três dos mesmos, em que ainda mais preferencialmente o um ou mais heteroátomos compreendem N e/ou O, preferencialmente O. Com relação ao número de heteroátomos que são contidos como membros de cadeia do cicloalquil heterocíclico de acordo com as

modalidades particulares da presente invenção, seu número pode variar em qualquer um entre 1 a 4, em que preferencialmente a partir de 1 a 3 heteroátomos estão presentes no cicloalquil heterocíclico, mais preferencialmente 1 ou 2, em que ainda mais preferencialmente um heteroátomo é contido na metade cicloalquil heterocíclico de R⁸ de acordo com as modalidades particulares da presente invenção. É, portanto, particularmente preferencial de acordo com a presente invenção que a metade cicloalquil R⁸ do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R⁵R⁶R⁷R⁸N⁺ provido na etapa (1) do processo inventivo é cicloalquil, que não contém um heteroátomo, preferencialmente ciclohexil.

[0030] Portanto, no que se refere ao um ou mais cátions de tetra-alquilamônios R⁵R⁶R⁷R⁸N⁺ providos adicionalmente na mistura de acordo com a etapa (1) do processo inventivo, é preferencial de acordo com a presente invenção que R⁸ representa cicloalquil de 5 a 8 membros opcionalmente substituído e/ou opcionalmente heterocíclico, preferencialmente cicloalquil de 5 a 7 membros, mais preferencialmente cicloalquil de 5 ou 6 membros, em que ainda mais preferencialmente R⁸ representa cicloalquil de 6 membros opcionalmente substituído e/ou opcionalmente heterocíclico, preferencialmente ciclohexil opcionalmente substituído, e mais preferencialmente ciclohexil não substituído.

[0031] Além disso, de acordo com as modalidades particularmente preferenciais do processo inventivo, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R⁵R⁶R⁷R⁸N⁺ compreendem um ou mais compostos de N,N,N-tri(C₁-C₄)alquil-(C₅-C₇) cicloalquilamônio, preferencialmente um ou mais compostos de cicloalquilamônio N,N,N-tri(C₁-C₃)alquil-(C₅-C₆), mais preferencialmente um ou mais compostos de cicloalquilamônio N,N,N-tri(C₁-C₂)alquil-(C₅-C₆), mais preferencialmente um ou mais compostos N,N,N-tri(C₁-C₂)alquil-ciclopentilamônio e/ou um ou mais N,N,N-tri(C₁-C₂)alquil-

ciclohexilamônio, mais preferencialmente um ou mais compostos selecionados a partir de compostos *N,N,N*-trietil-ciclohexilamônio, *N,N*-dietil-*N*-metilciclohexilamônio, *N,N*-dimetil-*N*-etyl-ciclohexilamônio, *N,N,N*-trimetilciclohexilamônio e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que é ainda mais preferencial, de acordo com o processo inventivo, que o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^5R^6R^7R^8N^+$ compreendem um ou mais compostos *N,N,N*-trimetil-ciclohexilamônio, em que é ainda mais preferencialmente que o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^5R^6R^7R^8N^+$ providos na etapa (1) do processo inventivo consiste em um ou mais compostos *N,N,N*-trimetil-ciclohexilamônio, ainda mais preferencialmente de um composto single *N,N,N*-trimetil-ciclohexilamônio único.

[0032] De acordo com a presente invenção, não há restrição particular quanto ao tipo do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ que podem ser providos na etapa (1) do processo inventivo considerando que o um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ contido nele pode agir como agente de direcionamento de estrutura mediante cristalização da mistura de reação na etapa (2) do processo inventivo. De acordo com modalidades preferenciais, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ contém um ou mais sais. Em princípio, de acordo com referidas modalidades preferenciais, não há restrição particular quanto ao contra-íon para o um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$, novamente considerando que esses permitem a cristalização de um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA na etapa (2) do processo inventivo pela ação de direcionamento de estrutura de um ou mais dos cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ mencionados acima. Assim, para fins de exemplo, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^5R^6R^7R^8N^+$ pode compreender um ou mais sais selecionados a partir de haletos, hidróxidos, sulfatos, nitratos, fosfatos, acetatos e misturas de dois ou

mais dos mesmos. Com relação aos sais de haleto, esses são preferencialmente sais de cloreto e/ou brometo, em que ainda mais preferencialmente sais de cloreto são empregados. De acordo com modalidades preferenciais da presente invenção, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^5R^6R^7R^8N^+$ compreendem um ou mais de um ou mais sais selecionados a partir do grupo consistindo em cloretos, hidróxidos, sulfatos e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^5R^6R^7R^8N^+$ são tetra-alquilamônio hidróxidos e/ou cloretos. De acordo com as modalidades particularmente preferenciais, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ são providos como seus sais de hidróxido na etapa (1) do processo inventivo.

[0033] Assim, de acordo com as modalidades particularmente preferenciais do processo inventivo que são adicionalmente preferenciais, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^5R^6R^7R^8N^+$ providos na etapa (1) compreendem um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em hidróxidos de $N,N,N\text{-tri}(C_1\text{-}C_4)\text{alquil-(C}_5\text{-}C_7\text{)}\text{cicloalquilamônio}$, preferencialmente de hidróxidos de $N,N,N\text{-tri}(C_1\text{-}C_3)\text{alquil-(C}_5\text{-}C_6\text{)}\text{cicloalquilamônio}$, mais preferencialmente de hidróxidos de $N,N,N\text{-tri}(C_1\text{-}C_2)\text{alquil-(C}_5\text{-}C_6\text{)}\text{cicloalquilamônio}$, mais preferencialmente de hidróxidos de $N,N,N\text{-tri}(C_1\text{-}C_2)\text{alquil-ciclopentilamônio}$ e/ou $N,N,N\text{-tri}(C_1\text{-}C_2)\text{alquil-ciclohexilamônio}$, em que é adicionalmente preferencial que o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^5R^6R^7R^8N^+$ sejam selecionados a partir do grupo consistindo em hidróxido de $N,N,N\text{-triethyl-ciclohexilamônio}$, hidróxido de $N,N\text{-diethyl-}N\text{-methyl-ciclohexilamônio}$, hidróxido de $N,N\text{-dimethyl-}N\text{-ethyl-ciclohexilamônio}$, hidróxido de $N,N,N\text{-trimethyl-ciclohexilamônio}$ e misturas de dois ou mais dos mesmos. De acordo com modalidades da presente invenção que são ainda mais preferenciais, o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R^5R^6R^7R^8N^+$ compreendem hidróxido de

N,N,N-trimetil-ciclohexilamônio, em que ainda mais preferencialmente os cátions de tetra-alquilamônio $R^5R^6R^7R^8N^+$ -contendo compostos provido na etapa (1) é hidróxido de *N,N,N-trimetil-ciclohexilamônio*.

[0034] De acordo com a presente invenção, a mistura provida na etapa (1) comprehende adicionalmente uma ou mais fontes para X_2O_3 , em que X é um elemento trivalente. Com relação aos elementos que podem ser empregados como o elemento trivalente X compreendido na uma ou mais fontes para X_2O_3 providas na etapa (1), não há restrição particular de acordo com a presente invenção quanto a quais elementos ou misturas de elementos podem ser empregados, considerando que um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA é cristalizado na etapa (2) comprendendo YO_2 e X_2O_3 como elementos de treliça. De acordo com modalidades preferenciais da presente invenção, X é selecionado a partir do grupo consistindo em Al, B, In, Ga, e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que preferencialmente X é Al e/ou B. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, X comprehende Al, em que ainda mais preferencialmente X é Al.

[0035] De acordo com a presente invenção, a mistura provida na etapa (1) comprehende uma ou mais fontes para X_2O_3 . Em casos em que uma ou mais fontes de Al_2O_3 são contidas na mistura, é preferencial que referida uma ou mais fontes comprehendam um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em alumina, aluminatos, sais de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que os aluminatos são preferencialmente um ou mais sais de aluminato selecionados a partir do grupo consistindo em aluminatos de metal alcalino, hidróxido de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, o metal alcalino preferencialmente sendo sódio e/ou potássio e, mais preferencialmente sendo sódio. De acordo com a presente invenção, é adicionalmente preferencial que a uma ou mais fontes de X_2O_3 comprehendam um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em alumina, sais de alumínio e

misturas de dois ou mais dos mesmos, em que, mais preferencialmente a uma ou mais fontes para X_2O_3 são selecionadas a partir do grupo consistindo em alumina, alumínio tri(C₁-C₅)alcóxido, AlO(OH), Al(OH)₃, haletos de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que os haletos de alumínio são preferencialmente cloreto de alumínio e/ou cloreto e/ou brometo, mais preferencialmente fluoreto de alumínio e/ou cloreto e, ainda mais preferencialmente cloreto de alumínio. É adicionalmente preferencial que a uma ou mais fontes para X_2O_3 compreendam um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em cloreto de alumínio, sulfato de alumínio, fosfato de alumínio, fluorossilicato de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente a uma ou mais fontes para X_2O_3 comprendem um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em alumínio tri(C₂-C₄)alcóxido, AlO(OH), Al(OH)₃, cloreto de alumínio, sulfato de alumínio, fosfato de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos. É particularmente preferencial de acordo com a presente invenção que a uma ou mais fontes para X_2O_3 compreendam um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em alumínio tri(C₂-C₃)alcóxido, AlO(OH), Al(OH)₃, cloreto de alumínio, sulfato de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em tripropóxidos de alumínio, AlO(OH), sulfato de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente a uma ou mais fontes para X_2O_3 comprendem triisopropóxido de alumínio, e em que ainda mais preferencialmente a uma ou mais fontes para X_2O_3 consistem em triisopropóxido de alumínio.

[0036] Na etapa (1) de acordo com a presente invenção, a mistura pode ser preparada por qualquer meio concebível, em que misturar por agitação é preferencial, preferencialmente ao mexer.

[0037] Em modalidades preferenciais do processo inventivo, a mistura provida na etapa (1) compreende adicionalmente um ou mais solventes.

De acordo com o processo inventivo, não há restrição particular com relação ao tipo e/ou número do um ou mais solventes, nem com relação à quantidade em que eles podem ser usados no processo inventivo considerando que um material zeolítico com a estrutura em treliça do tipo CHA pode ser cristalizado na etapa (2). De acordo com o processo inventivo, é, portanto, preferencial que o um ou mais solventes compreendam água, e mais preferencialmente água destilada, em que, de acordo com as modalidades particularmente preferenciais, água destilada é usada como o único solvente na mistura provida na etapa (1).

[0038] Em modalidades preferenciais do processo inventivo em que um ou mais solventes são empregados, não há restrição particular quanto a quantidade em que eles podem se empregados, em que em modalidades particularmente preferenciais empregando água e mais preferencialmente água destilada, a razão molar de H₂O:YO₂ da mistura pode variar para fins de exemplo em qualquer número de 1 a 50, em que preferencialmente a razão molar empregada é compreendida na faixa de 3 a 30, mais preferencialmente de 5 a 25, mais preferencialmente de 7 a 20 e ainda mais preferencialmente de 9 a 17. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção em que água, e preferencialmente água destilada, é compreendida entre o um ou mais solventes providos na etapa (1) e ainda mais preferencialmente é o único solvente usado na mistura de reação cristalizada na etapa (2), a razão molar de H₂O:YO₂ é compreendida na faixa de 11 a 15.

[0039] Com relação à quantidade em que o um ou mais cátions de tetra-alquilamônios R¹R²R³R⁴N⁺ podem ser providos na mistura na etapa (1) do processo inventivo, nenhuma restrição particular se aplica considerando que um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA pode ser cristalizada na etapa (2) do processo inventivo. Assim, para fins de exemplo, a razão molar do um ou mais cátions de tetra-alquilamônios R¹R²R³R⁴N⁺:YO₂ providos na mistura pode variar em qualquer número de 0,005 a 0,5, em que

preferencialmente a razão molar é compreendida na faixa de 0,01 a 0,25, mais preferencialmente de 0,03 a 0,2, mais preferencialmente a partir de 0,05 a 0,15, mais preferencialmente de 0,07 a 0,12 e mais preferencialmente de 0,08 a 0,11. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, a razão molar do um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^1R^2R^3R^4N^+ : YO_2$ providos na mistura de acordo com a etapa (1) é compreendida na faixa de 0,085 a 0,10.

[0040] O mesmo se aplica, consequentemente, à quantidade em que o um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ podem ser providos na mistura na etapa (1) do processo inventivo, tal que nenhuma restrição particular se aplica nessa relação, bem como, considerando que um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA pode ser cristalizada na etapa (2) do processo inventivo. Assim, para fins de exemplo, a razão molar do um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+ : YO_2$ providos na mistura podem variar em qualquer número de 0,001 a 2,0, em que preferencialmente a razão molar é compreendida na faixa de 0,005 a 1,0, mais preferencialmente de 0,01 a 0,5, mais preferencialmente de 0,03 a 0,3, mais preferencialmente de 0,05 a 0,25, mais preferencialmente de 0,07 a 0,22, mais preferencialmente de 0,08 a 0,2 e mais preferencialmente de 0,09 a 0,19. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, a razão molar do um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+ : YO_2$ providos na mistura de acordo com a etapa (1) é compreendida na faixa de 0,10 a 0,18.

[0041] Com relação às quantidades relativas do um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^1R^2R^3R^4N^+$ e $R^5R^6R^7R^8N^+$ entre si, elas podem ser usadas em qualquer relação adequada entre si considerando que uma estrutura em treliça do tipo CHA pode ser cristalizada na etapa (2) do processo inventivo. Assim, com relação à razão molar $R^1R^2R^3R^4N^+ : R^5R^6R^7R^8N^+$ do um ou mais

cátions de tetra-alquilamônios $R^1R^2R^3R^4N^+$ e o um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ contidos na mistura providos de acordo com a etapa (1), nenhuma restrição particular se aplica de tal modo que, para fins de exemplo, a razão molar $R^1R^2R^3R^4N^+ : R^5R^6R^7R^8N^+$ pode variar em qualquer lugar de 0,01 a 5, em que preferencialmente a razão molar é compreendida na faixa de 0,05 a 2, mais preferencialmente de 0,1 a 1,5, mais preferencialmente de 0,2 a 1,2, mais preferencialmente de 0,3 a 1,1, mais preferencialmente de 0,4 a 1, e mais preferencialmente de 0,45 a 0,65. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que a razão molar $R^1R^2R^3R^4N^+ : R^5R^6R^7R^8N^+$ na mistura provida de acordo com a etapa (1) é compreendida na faixa de 0,5 a 0,9.

[0042] Com relação à cristalização desempenhada na etapa (2) do processo inventivo, nenhuma restrição particular se aplica de acordo com a presente invenção quanto aos meios reais empregados para permitir a cristalização de um material zeolítico a partir da mistura da etapa (1). Assim, qualquer meio adequado pode ser empregado em que é preferencial que a cristalização é atingida ao aquecer a mistura da etapa (1). De acordo com referidas modalidades preferenciais, nenhuma restrição particular novamente se aplica com relação à temperatura em que referida cristalização pode ser atingida, em que é preferencial que a cristalização seja conduzida sob aquecimento em uma temperatura compreendida na faixa de 90 a 250 °C, mais preferencialmente de 100 a 220 °C, mais preferencialmente de 130 a 200 °C, mais preferencialmente de 150 a 190 °C, e mais preferencialmente de 160 a 180 °C. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o aquecimento preferencial da mistura provida na etapa (1) para cristalização de um material zeolítico seja conduzida em uma temperatura compreendida na faixa de 165 a 175 °C.

[0043] Com relação ao aquecimento, preferencialmente empregado na etapa (2) do processo inventivo como meio para a cristalização

do material zeolítico, referido aquecimento pode, em princípio, ser conduzido sob qualquer pressão adequada considerando que a cristalização é atingida. Em modalidades preferenciais da presente invenção, a mistura de acordo com a etapa (1) é submetida, na etapa (2), a uma pressão que é elevada com relação à pressão normal. O termo "pressão normal" como usado no contexto da presente invenção se refere a uma pressão de 101,325 Pa em caso ideal. No entanto, essa pressão pode variar dentro dos limites conhecidos pela pessoa versada na técnica. Para fins de exemplo, essa pressão pode estar na faixa de 95,000 a 106,000 ou de 96,000 a 105,000 ou de 97,000 a 104,000 ou de 98,000 a 103,000 ou de 99,000 a 102,000 Pa.

[0044] Em modalidades preferenciais do processo inventivo em que um solvente está presente na mistura de acordo com a etapa (1), é adicionalmente preferencial que o aquecimento na etapa (2) seja conduzido sob condições solvotérmicas, significando que a mistura é cristalizada sob pressão autógena do solvente que é usada, por exemplo, ao conduzir calor em uma autoclave ou outro recipiente de cristalização adequada para gerar condições solvotérmicas. Em modalidades particularmente preferenciais em que o solvente compreende água, preferencialmente água destilada, calor na etapa (2) é consequentemente preferencialmente conduzido sob condições hidrotérmicas.

[0045] Os aparelhos que podem ser usados na presente invenção para cristalização não são particularmente restritos, considerando eu os parâmetros desejados para o processo de cristalização podem ser realizados, em particular com relação às modalidades preferenciais exigindo condições de cristalização particulares. Nas modalidades preferenciais conduzidas sob condições solvotérmicas, e em particular sob condições hidrotérmicas, qualquer tipo de recipiente de autoclave ou digestão pode ser usado.

[0046] Além disso, com relação ao período em que o aquecimento preferencial na etapa (2) do processo inventivo é conduzido para cristalizar o

material zeolítico, há novamente nenhuma restrição particular com relação a isso, considerando que o período de aquecimento é adequado para atingir cristalização. Assim, para fins de exemplo, o período de aquecimento pode variar em qualquer número de 3 a 40h, preferencialmente de 5 a 30h, mais preferencialmente de 8 a 25h, mais preferencialmente de 10 a 22h, e mais preferencialmente de 13 a 21h. De acordo com a presente Invenção, é particularmente preferencial que aquecimento na etapa (2) do processo inventivo seja conduzida por um período de 15 a 20h.

[0047] De acordo com modalidades preferenciais da presente invenção, em que a mistura é aquecida na etapa (2), referido aquecimento pode ser conduzido durante o total processo de cristalização ou durante uma ou mais porções da mesma, considerando que um material zeolítico é cristalizado. Preferencialmente, o aquecimento é conduzido durante toda a duração da cristalização.

[0048] Adicionalmente, com relação aos meios de cristalização na etapa (2) do processo inventivo, é principalmente possível, de acordo com a presente invenção, desempenhar referida cristalização tanto sob condições estáticas ou por meio de agitação da mistura. De acordo com modalidades envolvendo a agitação da mistura, não há restrição particular quanto ao meio pelo qual referida agitação pode ser desempenhada de tal modo que qualquer um dentre os meios vibracionais, a rotação do recipiente de reação, e/ou agitação mecânica da mistura de reação pode ser empregada para esse efeito em que, de acordo com referidas modalidades, é preferencial que a agitação é atingida ao mexer a mistura de reação. De acordo com modalidades alternativamente preferenciais, no entanto, cristalização é desempenhada sob condições estáticas, ou seja, na ausência de qualquer meio particular de agitação durante o processo de cristalização.

[0049] Em geral, o processo da presente invenção pode

compreender opcionalmente etapas adicionais para o trabalho e/ou transformação física e/ou química adicional do material zeolítico cristalizado na etapa (2) a partir da mistura provida na etapa (1). O material cristalizado pode, por exemplo, ser submetido a qualquer sequência de isolamento e/ou procedimentos de lavagem, em que o material zeolítico obtido a partir da cristalização na etapa (2) é preferencialmente submetido ao pelo menos um isolamento e pelo menos um procedimento de lavagem.

[0050] O isolamento do produto cristalizado pode ser atingido por qualquer meio concebível. Preferencialmente, o isolamento do produto cristalizado pode ser atingido por meio de métodos de filtração, ultrafiltração, diafiltração, centrifugação e/ou decantação, em que os métodos de filtração podem envolver etapas de sucção e/ou filtração por pressão.

[0051] Com relação ao um ou mais procedimentos de lavagem opcionais, qualquer solvente concebível pode ser usado. Agentes de lavagem que podem ser usados são, por exemplo, água, álcoois, tal como metanol, etanol ou propanol, ou misturas de dois ou mais dos mesmos. Exemplos de misturas são misturas de dois ou mais álcoois, tal como metanol e etanol ou metanol e propanol ou etanol e propanol ou metanol e etanol e propanol, ou misturas de água e pelo menos um álcool, tal como água e metanol ou água e etanol ou água e propanol ou água e metanol e etanol ou água e metanol e propanol ou água e etanol e propanol ou água e metanol e etanol e propanol. Água ou uma mistura de água e pelo menos um álcool, preferencialmente água e etanol, é preferencial, água destilada sendo muito particularmente preferencial como o único agente de lavagem.

[0052] Preferencialmente, o material zeolítico separado é lavado até o pH do agente de lavagem, preferencialmente a água de lavagem, está na faixa de 6 a 8, preferencialmente de 6,5 a 7,5.

[0053] Além disso, o processo inventivo pode compreender

adicionalmente uma ou mais etapas de secagem. Em geral, qualquer meio concebível de secagem pode ser usado. Procedimentos de secagem preferencialmente incluem aquecer e/ou aplicar vácuo ao material zeolítico. Em modalidades contempladas da presente invenção, uma ou mais etapas de secagem podem envolver secagem por pulverização, preferencialmente granulação por pulverização, do material zeolítico.

[0054] Em modalidades que compreendem pelo menos uma etapa de secagem, as temperaturas de secagem são preferencialmente na faixa de 25 °C a 150 °C, mais preferencialmente de 60 a 140 °C, mais preferencialmente de 70 a 130 °C e ainda mais preferencialmente na faixa de 75 a 125 °C. As durações de secagem são preferencialmente na faixa de 2 a 48 h, mais preferencialmente na faixa de 4 a 36 horas, mais preferencialmente de 6 a 24 h e ainda mais preferencialmente de 8 a 12 h.

[0055] Em geral, os procedimentos de lavagem opcionais e/ou de isolamento e/ou de troca de íons compreendidos no processo inventivo podem ser conduzidos em qualquer ordem concebível e repetidos frequentemente, como desejado.

[0056] Portanto, de acordo com modalidades preferenciais da presente invenção, o processo para a preparação de um material zeolítico compreende adicionalmente um ou mais das seguintes etapas de:

- (1) isolar o material zeolítico, preferencialmente por filtração,
e/ou
- (2) lavar o material zeolítico,
e/ou
- (3) secar e/ou calcinar o material zeolítico,
e/ou
- (4) submeter o material zeolítico a um procedimento de troca de
íon,

em que as etapas (3) e/ou (4) e/ou (5) e/ou (6) podem ser conduzidas em qualquer ordem, e

em que um ou amis de referidas etapas é preferencialmente repetida uma ou mais vezes.

[0057] Com relação à calcinação do material zeolítico, de acordo com (5), após isolamento opcional, lavagem e/ou secagem dos mesmos, nenhuma restrição particular se aplica de tal modo que, em princípio, referida calcinação pode ser conduzida em qualquer temperatura adequada e por qualquer duração adequada. Assim, para fins de exemplo, a calcinação pode ser conduzida em uma temperatura na faixa de 400 a 850 °C, em que preferencialmente, a calcinação é conduzida em uma temperatura variando de 450 a 700 °C, mais preferencialmente de 500 a 600 °C, e mais preferencialmente de 525 a 575 °C. Além disso, a duração da calcinação pode variar em qualquer número de 2 a 48h, em que a calcinação é preferencialmente conduzida por um período variando de 3 a 24h, mais preferencialmente de 4 a 12h, mais preferencialmente de 4,5 a 8h, e mais preferencialmente de 5 a 6h. De acordo com o processo inventivo, é particularmente preferencial que a calcinação do material zeolítico, de acordo com (5), seja conduzida em uma temperatura na faixa de 400 a 850 °C por 2 a 48h, mais preferencialmente em uma temperatura na faixa de 450 a 700 °C por 3 a 24h, mais preferencialmente em uma temperatura na faixa de 500 a 600 °C ou 4 a 12h, mais preferencialmente em uma temperatura na faixa de 525 a 575 °C por 4,5 a 8h, e mais preferencialmente em uma temperatura na faixa de 525 a 575 °C por 5 a 6h.

[0058] Assim, de acordo com o processo inventivo, o material zeolítico cristalizado na etapa (2) pode ser opcionalmente submetido a pelo menos uma etapa de um procedimento de troca de íon, em que o termo “troca de íon” de acordo com a presente invenção geralmente se refere a moléculas e/ou elementos iônicos não de treliça contidos no material zeolítico, que são

consequentemente trocados por outros íons, que são geralmente providos a partir de uma fonte externa. Preferencialmente, um elemento iônico não de treliça compreende um ou mais do um ou mais metais alcalinos M preferencialmente compreendidos no material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA cristalizada na etapa (2), mais preferencialmente Na e/ou K, e ainda mais preferencialmente Na.

[0059] Em geral, qualquer procedimento de troca de íon concebível com todos os elementos e/ou moléculas iônicas concebíveis podem ser conduzidos no material zeolítico. Preferencialmente, como elementos iônicos, pelo menos um cátion e/ou elemento catiônico é empregado, que é preferencialmente selecionado a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Sr, Zr, Cr, Mg, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ru, Rh, Pd, Ag, Os, Ir, Pt, Au e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Sr, Cr, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Cr, Mg, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, o um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos são selecionados a partir do grupo consistindo em Mg, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o um ou mais cátion e/ou elementos catiônicos compreendem Cu e/ou Fe, preferencialmente Cu, em que ainda mais preferencialmente o um ou mais cátion e/ou elementos catiônicos consistem em Cu e/ou Fe, preferencialmente em Cu. Preferencialmente, o material zeolítico é primeiro trocado de íon com H⁺ e/ou NH₄⁺, e mais preferencialmente com NH₄⁺, antes de serem submetidos a um procedimento de troca de íon adicional, mais preferencialmente antes de serem submetidos a uma troca de íon com pelo menos um cátion e/ou elemento catiônico selecionado a partir do grupo consistindo em Sr, Zr, Cr, Mg, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ru, Rh, Pd, Ag, Os, Ir, Pt,

Au e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em Sr, Cr, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em Cr, Mg, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em Mg, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que, mais preferencialmente, o material zeolítico é primeiro trocado de íon com um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos compreendendo Cu e/ou Fe, preferencialmente Cu, em que mais preferencialmente o um ou mais cátion e/ou elementos catiônicos consistem em Cu e/ou Fe, preferencialmente em Cu. Com relação às modalidades preferenciais da presente invenção em que o material zeolítico é primeiro trocado de íon com um NH_4^+ antes de ser submetido a um procedimento de troca de íon adicional, isso também pode ser atingido por transformação de íons de H^+ já contidos no material zeolítico para os íons NH_4^+ por tratamento apropriado com amônia ou qualquer composto precursor do mesmo. Com relação ao um ou mais elementos iônicos não de treliça que sofrem troca de íon, não há restrição particular de acordo com a presente invenção quanto a quais elementos iônicos não de treliça presentes no material zeolítico podem sofrer troca de íon de acordo com as modalidades preferenciais mencionadas acima, em que preferencialmente o um ou mais elementos iônicos não de treliça a sofrerem trocas compreendam H^+ e/ou um metal alcalino, o metal alcalino preferencialmente sendo selecionado a partir do grupo consistindo em Li, Na, K, Cs e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em Li, Na, K e combinações de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o metal alcalino é Na e/ou K e, ainda mais preferencialmente, Na.

[0060] De acordo com uma modalidade adicional do processo inventivo, o material zeolítico cristalizado na etapa (2) é diretamente submetido

a pelo menos uma etapa de secagem, preferencialmente para secagem por pulverização e/ou granulação por pulverização, sem isolar, lavar ou secar o material zeolítico de antemão. Submeter diretamente a mistura obtida a partir da etapa (2) do processo inventivo a uma secagem por pulverização ou ao estágio de granulação por pulverização tem a vantagem de que o isolamento e a secagem são desempenhados em um único estágio. Consequentemente, de acordo com essa modalidade da presente invenção, um processo ainda mais preferencial é provido em que o número de etapas de trabalho pós-síntese são minimizados, como um resultado o material zeolítico pode ser obtido a partir de um processo altamente simplificado.

[0061] De acordo com uma modalidade adicional da presente invenção, o material zeolítico obtido a partir da cristalização na etapa (2) é submetido a pelo menos uma etapa de isolamento antes de ser submetido a pelo menos um procedimento de troca de íon, preferencialmente a pelo menos uma etapa de isolamento seguida por pelo menos uma etapa de lavagem, e mais preferencialmente a pelo menos uma etapa de isolamento seguida por pelo menos uma etapa de lavagem seguida por pelo menos uma etapa de secagem.

[0062] Em geral, o material zeolítico obtido de acordo com o processo inventivo pode ser qualquer material zeolítico concebível, em que, preferencialmente, referido material zeolítico formado na etapa (2) compreende um ou mais zeólitos com a estrutura em treliça do tipo CHA. Entre os materiais zeolíticos preferenciais compreendendo um ou mais zeólitos com a estrutura em treliça do tipo CHA, não há restrição particular, nem com relação ao tipo e/ou número dos mesmos, nem com relação à quantidade dos mesmos no material zeolítico. De acordo com modalidades preferenciais da presente invenção, o um ou mais zeólitos com a estrutura de treliça de CHA compreendem um ou mais zeólitos selecionados a partir do grupo consistindo em (Ni(delta)₂)-UT-6, Chabazita, |Li-Na| [Al-Si-O]-CHA, DAF-5, Na-Chabazita desidratado, K-

Chabazita, LZ-218, Linde D, Linde R, Phi, SSZ-62, UiO-21, Willhendersonita, ZK-14, ZYT-6 e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em (Ni(delta)₂)-UT-6, Chabazita, |Li-Na| [Al-Si-O]-CHA, DAF-5, Na-Chabazita desidratado, K-Chabazita (Iran), LZ-218, Linde D, Linde R, Phi, SSZ-62, UiO-21, Willhendersonita, ZK-14, ZYT-6 e combinações de dois ou mais dos mesmos, em que ainda mais preferencialmente o material zeolítico formado na etapa (2) comprehende Chabazita.

[0063] De acordo com o processo inventivo, é particularmente preferencial que a mistura provida na etapa (1) e cristalizada na etapa (2), em nenhum ponto contém qualquer quantidade substancial de um outro agente orgânico de direcionamento de estrutura além do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₅R₆R₇R₈N⁺ de acordo com qualquer uma dentre as modalidades particulares e modalidades preferenciais da presente invenção, em que tal outro agente orgânico de direcionamento de estruturas além dos compostos de tetra-alquilamônio usados no processo inventivo preferencialmente designaram quaisquer outros modelos orgânicos concebíveis que podem ser usados de maneira adequada na síntese de materiais zeolíticos com uma estrutura em treliça do tipo CHA tanto sozinhos, ou em combinação com o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₅R₆R₇R₈N⁺ de acordo com a presente invenção. De acordo com um significado preferencial da presente invenção, o outro agente orgânico de direcionamento de estrutura além do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₅R₆R₇R₈N⁺ designa qualquer um ou mais compostos selecionados a partir de aminas de dialquil, e/ou aminas heterocíclicas, incluindo qualquer combinação de dois ou mais dos mesmos, em que preferencialmente referido um ou mais outros agentes orgânicos de direcionamento de estrutura são selecionados a partir do grupo consistindo em di(C₁ – C₅)alquil aminas, aminas heterocíclicas contendo oxigênio com 5 a 8 membros de anel, e

combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em di(C₂ – C₄)alquil aminas, aminas heterocíclicas contendo oxigênio com 5 a 7 membros de anel, e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em di(C₂ – C₃)alquil aminas, aminas heterocíclicas contendo oxigênio com 5 ou 6 membros de anel, e combinações de dois ou mais dos mesmos, e/ou modelos orgânicos relacionados tal que qualquer composto de N-alquil-3-quinuclidinol, compostos de N,N,N-trialquil-exoaminonorbornano, composto de N,N,N-trimetil-1-adamantilamônio, composto de N,N,N-trimetil-2-adamantilamônio, composto de N,N,N-trimetilciclohexilamônio, composto de N,N-dimetil-3,3-dimetilpiperidínio, composto de N,N-metiletil-3,3-dimetilpiperidínio, composto de N,N-dimetil-2-metilpiperidínio, composto de 1,3,3,6,6-pentametil-6-azônio-biciclo(3.2.1)octano, composto de N,N-dimetilciclohexilamina ou qualquer composto de N,N,N-trimetilbenzilamônio adequado, incluindo combinações de dois ou mais dos mesmos. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, a mistura provida na etapa (1) não contém qualquer quantidade substancial de um composto contendo trimetil benzil amônio e, preferencialmente, não qualquer quantidade substancial de um composto de trialquil benzil amônio, em que ainda mais preferencialmente a mistura provida na etapa (1) apenas contém um ou mais compostos de N,N,N-trimetilciclohexilamônio compostos e preferencialmente hidróxido de N,N,N-trimetilciclohexilamônio como agente de direcionamento de estrutura para a cristalização de um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA na etapa (2).

[0064] Portanto, é preferencial, de acordo com a presente invenção, que a mistura provida na etapa (1) não contenha qualquer quantidade substancial de um composto contendo trimetil benzil amônio, preferencialmente de um composto de trialquil benzil amônio, em que, preferencialmente, a mistura

provida na etapa (1) não contém qualquer quantidade substancial de um outro modelo orgânico além do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R_5R_6R_7R_8N^+$ como agente de direcionamento de estrutura, em que mais preferencialmente a mistura provida na etapa (1) não contém qualquer quantidade substancial de um outro agente de direcionamento de estrutura além do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R_5R_6R_7R_8N^+$, e em que ainda mais preferencialmente, a mistura provida na etapa (1) apenas contém um ou mais compostos de N,N,N -trimetilciclohexilamônio e preferencialmente hidróxido de N,N,N -trimetilciclohexilamônio como agente de direcionamento de estrutura para a cristalização de um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA na etapa (2).

[0065] De acordo com modalidades específicas da presente invenção, não mais do que uma impureza de referido um ou mais outro agente orgânico de direcionamento de estrutura pode, no entanto, estar presente na mistura de reação, por exemplo, como resultado de referido um ou mais outros agentes orgânicos de direcionamento de estrutura ainda estando presente nos germes cristalinos preferencialmente usados no processo inventivo. Tais outros modelos orgânicos contidos em material de cristal de semente podem, no entanto, não participar no processo de cristalização uma vez que estão presos dentro da treliça de cristal de semente e, portanto, podem não agir como agentes de direcionamento de estruturas dentro do significado da presente invenção.

[0066] Dentro do significado da presente invenção, o termo “substancialmente”, como empregado na presente aplicação, com relação à quantidade de qualquer outro um ou mais modelos orgânicos além do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R_5R_6R_7R_8N^+$ como agente de direcionamento de estrutura contido na mistura provida na etapa (1), indica uma quantidade de 0,1% em peso ou menos da quantidade total de

qualquer um ou mais modelos orgânicos, preferencialmente 0,05% em peso ou menos, mais preferencialmente 0,001% em peso ou menos, mais preferencialmente 0,0005% em peso ou menos, e ainda mais preferencialmente 0,0001% em peso ou menos dos mesmos. Referidas quantidades de um ou mais outros modelos orgânicos, se em todos os presentes, um qualquer um dos materiais usados no processo sintético, também podem ser denotadas como “impurezas” ou “quantidades de resíduos” dentro do significado da presente invenção. Além disso, nota-se que os termos “modelo orgânico” e “agente orgânico de direcionamento de estrutura” são usados de maneira sinônima no presente pedido.

[0067] De acordo com o processo da presente invenção, germes cristalinos podem ser opcionalmente providos na etapa (1), em que referidos germes cristalinos preferencialmente compreendem um material zeolítico do mesmo tipo de estrutura de treliça que o obtido por cristalização na etapa (2), em que mais preferencialmente os germes cristalinos compreendem um material zeolítico como obtido de acordo com o processo inventivo. De acordo com modalidades particularmente preferenciais, os germes cristalinos compreendem um ou mais materiais zeolíticos com uma estrutura em treliça do tipo CHA. De acordo com referidas modalidades preferenciais, os germes cristalinos podem compreender qualquer material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA, considerando que um material zeolítico é cristalizado na etapa (2), que é preferencialmente um material zeolítico com a estrutura em treliça do tipo CHA, em que mais preferencialmente o material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA compreendida nos germes cristalinos é um material zeolítico obtido de acordo com o processo inventivo, e em que ainda mais preferencialmente o material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA, compreendido nos germes cristalinos, é o mesmo que o material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA, que é entaõ cristalizado na etapa (2). São particularmente

preferenciais, de acordo com a presente invenção, germes cristalinos compreendendo um ou mais zeólitos selecionados a partir do grupo consistindo em (Ni(delta)₂)-UT-6, Chabazita, |Li-Na| [Al-Si-O]-CHA, DAF-5, Na-Chabazita desidratada, K-Chabazita, LZ-218, Linde D, Linde R, Phi, SSZ-62, UiO-21, Willhendersonita, ZK-14, ZYT-6 e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente os germes cristalinos compreendem um ou mais zeólitos selecionados a partir do grupo consistindo em(Ni(delta)₂)-UT-6, Chabazita, |Li-Na| [Al-Si-O]-CHA, DAF-5, Na-Chabazita desidratada, K-Chabazita (Iran), LZ-218, Linde D, Linde R, Phi, SSZ-62, UiO-21, Willhendersonita, ZK-14, ZYT-6 e misturas de dois ou mais dos mesmos, e em que, ainda mais preferencialmente, os germes cristalinos compreendem Chabazita. De acordo com modalidades ainda mais preferenciais, Chabazita é empregada como germes cristalinos no processo inventivo, em que preferencialmente referidos germes cristalinos de Chabazita são obteníveis de acordo com o processo inventivo ou foram obtidos de acordo com referido processo.

[0068] Com relação aos germes cristalinos de Chabazita preferencialmente providos na etapa (1), em princípio, não há nenhuma restrição particular quanto às suas propriedades químicas e/ou físicas, considerando que um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA compreendendo YO₂ e X₂O₃ é cristalizada na etapa (2). Assim, com relação á razão molar de SiO₂:Al₂O₃ dos germes cristalinos de Chabazita preferencialmente usados no processo inventivo, nenhuma restrição particular se aplica, tal que os germes cristalinos podem exibir qualquer razão molar SiO₂:Al₂O₃ adequada. Assim, para fins de exemplos, a razão molar de SiO₂:Al₂O₃ dos germes cristalinos de Chabazita preferenciais podem variar em qualquer número de 4 a 200, preferencialmente de 10 a 100, mais preferencialmente de 16 a 60, mais preferencialmente de 20 a 40, mais preferencialmente de 25 a 35 e, ainda mais preferencialmente, de 29 a 33.

[0069] Além disso, com relação às moléculas e/ou elementos de treliça não iônicos que podem estar contidos nos germes cristalinos de Chabazita preferencialmente providos na etapa (1) do processo inventivo, novamente nenhuma restrição particular se aplica, em que preferencialmente o um ou mais elementos não de treliça e/ou moléculas compreendem pelo menos um cátion e/ou elementos catiônicos, em que referido pelo menos um cátion e/ou elemento catiônico é preferencialmente selecionado a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Li, Na, K, Cs e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Na, K e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Na e combinações de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o pelo menos um cátion e/ou elemento catiônico é H⁺ e/ou Na, mais preferencialmente Na.

[0070] Com relação à porosidade e/ou área de superfície dos germes cristalinos de Chabazita preferencialmente providos na etapa (1) do processo inventivo, elas podem adotar quaisquer valores adequados. Assim, com relação à área de superfície BET dos germes cristalinos de Chabazita, como determinado de acordo com DIN 66135, ela pode consequentemente variar a partir de 100 a 850 m²/g, em que preferencialmente a área de superfície é compreendida na faixa de 300 a 800 m²/g, mais preferencialmente de 400 a 750 m²/g, mais preferencialmente de 500 a 700 m²/g, mais preferencialmente de 550 a 650 m²/g, e ainda mais preferencialmente de 580 a 640 m²/g. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, a área de superfície BET dos germes cristalinos de Chabazita preferencialmente providos na etapa (1) do processo inventivo como determinado, de acordo com DIN 66135, varia de 600 a 630 m²/g.

[0071] Com relação ao tamanho de partícula médio dos germes cristalinos de Chabazita preferencialmente provido na etapa (1) do processo

inventivo, ele pode exibir consequentemente qualquer tamanho de partícula concebível e, em particular, qualquer tamanho de partícula concebível D10 e/ou D50 e/ou D90. Assim, no que se refere ao tamanho de partícula D10 dos germes cristalinos de Chabazita preferenciais, nenhuma restrição particular se aplica de tal modo que, para fins de exemplo, o tamanho de partícula D10 do mesmo pode ser compreendido na faixa de qualquer número de 5 a 200 nm. De acordo com a presente invenção, portanto, é preferencial que o tamanho de partícula D10 dos germes cristalinos de Chabazita preferenciais se encontrem dentro da faixa de 10 a 150 nm, mais preferencialmente de 15 a 100 nm, mais preferencialmente de 20 a 70 nm, e mais preferencialmente de 25 a 50 nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula D10 dos germes cristalinos de Chabazita preferenciais se encontra dentro da faixa de 30 a 40 nm.

[0072] Com relação ao tamanho de partícula médio D50 dos germes cristalinos Chabazita preferenciais, o mesmo se aplica, consequentemente, tal que, em princípio, referidos valores podem adotar qualquer valor concebível. Assim, para fins de exemplo, o tamanho de partícula médio D50 dos germes cristalinos de Chabazita preferenciais pode estar compreendido na faixa de 50 a 1,000 nm, em que, preferencialmente, o tamanho de partícula médio D50 se encontra na faixa de 100 a 700 nm, mais preferencialmente de 150 a 500 nm, mais preferencialmente de 200 a 400 nm, e mais preferencialmente de 250 a 350 nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula médio D50 dos germes cristalinos de Chabazita preferenciais se encontrem na faixa de 270 a 290 nm.

[0073] Como mencionado anteriormente em relação ao tamanho de partículas D10 e D50, em geral, nenhuma restrição particular se aplica em relação ao tamanho de partícula D90, bem como tal que os germes cristalinos

de Chabazita preferenciais possam adotar qualquer valor de tamanho de partícula concebível D90. Assim, para fins de exemplo, o tamanho de partícula D90 dos germes cristalinos de Chabazita preferenciais podem ser compreendidos na faixa de qualquer número de 500 a 3.000 nm, em que é preferível que o tamanho de partícula D90 seja compreendido na faixa de 800 a 2.500 nm, mais preferencialmente de 1.000 a 2.000 nm, mais preferencialmente de 1.200 a 1.800 nm, mais preferencialmente de 1.300 a 1.700 nm, mais preferencialmente de 1.400 a 1.650 nm, mais preferencialmente de 1.450 a 1.600 nm, e mais preferencialmente de 1.500 a 1.580 nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula D90 dos germes cristalinos de Chabazita preferenciais é compreendido na faixa de 1.530 a 1.550 nm.

[0074] Finalmente, os germes cristalinos de Chabazita preferencialmente providos na etapa (1) podem ser submetidos a qualquer tratamento adequado antes de seu uso. Assim, para fins de exemplo, os germes cristalinos de Chabazita preferenciais podem ser submetidos a qualquer troca de íon e/ou tratamento térmico antes de seu uso, tal que os germes cristalinos de Chabazita podem ser usados tal que, e em particular na forma não calcinada, como obtidos a partir de síntese, ou podem ser submetidos a calcinação antes de seu uso. De acordo com o processo inventivo é, preferencial, no entanto, que os germes cristalinos de Chabazita preferenciais sejam calcinados antes de seu uso no processo inventivo, em que a calcinação é preferencialmente desempenhada em uma temperatura variando de 400 a 850 °C, em que preferencialmente, a calcinação é conduzida em uma temperatura variando de 450 a 700 °C, mais preferencialmente de 525 a 650 °C, e mais preferencialmente de 575 a 625 °C. Além disso, a duração da calcinação pode variar em qualquer número de 1 a 48h, em que a calcinação é preferencialmente conduzida por um período variando de 2 a 24h, mais preferencialmente de 3 a 12h, mais

preferencialmente de 3,5 a 8h, e mais preferencialmente de 4 a 6h.

[0075] De acordo com o processo inventivo, qualquer quantidade adequada de germes cristalinos pode ser provida na mistura de acordo com a etapa (1), considerando que um material zeolítico é cristalizado na etapa (2). Em geral, a quantidade de germes cristalinos contida na mistura de acordo com a etapa (1) varia de 0,1 a 20% em peso com base no 100% em peso de YO₂ na pelo menos uma fonte para YO₂, preferencialmente de 0,5 a 15% em peso, mais preferencialmente de 1 a 12% em peso, mais preferencialmente de 1,5 a 10% em peso, mais preferencialmente de 2 a 8% em peso, mais preferencialmente de 2,5 a 6% em peso, e mais preferencialmente de 3 a 5% em peso. De acordo com as modalidades particularmente preferenciais do processo inventivo, de 3,5 a 4,5% em peso de germes cristalinos de acordo com quaisquer das modalidades particulares e preferenciais da presente invenção são empregados, com base em 100% em peso de YO₂ na pelo menos uma fonte para YO₂ provida na etapa (1) do processo inventivo.

[0076] Com relação aos elementos ou compostos adicionais que podem ser contidos na mistura provida na etapa (1), não há restrição particular de acordo com a presente invenção com relação a isso, considerando que um material zeolítico com a estrutura em treliça do tipo CHA pode ser obtido na etapa (2) do processo inventivo. Assim, de acordo com as modalidades particulares da presente invenção, a mistura provida na etapa (1) pode compreender um ou mais metais alcalinos M, em que dentro do significado da presente invenção, o um ou mais metais alcalinos M preferencialmente representa um ou mais elementos selecionados a partir do grupo consistindo em Li, Na, K, Rb, Cs e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em Li, Na, K e combinações de dois ou mais dos mesmos, em que ainda mais preferencialmente o um de mais metais alcalinos M representam Na e/ou K, e, ainda mais preferencialmente, Na.

[0077] Com relação às modalidades particulares da presente invenção em que a mistura provida na etapa (1) compreende um ou mais metais alcalinos M de acordo com quaisquer dos significados particulares e preferenciais da presente invenção, não há restrição particular quanto às quantidades em que eles podem ser contidos em referida mistura, considerando que um material zeolítico com a estrutura em treliça do tipo CHA pode ser obtido na etapa (2) do processo inventivo. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, no entanto, a mistura provida na etapa (1) que é cristalizada na etapa (2) contém 3% em peso ou menos de um ou mais metais alcalinos M com base em 100% em peso de YO₂. De acordo com as modalidades que são adicionalmente preferenciais, a mistura provida na etapa (1) contém 1% em peso ou menos de um ou mais metais alcalinos M, mais preferencialmente 0,5% em peso ou menos, mais preferencialmente 0,1% em peso ou menos, mais preferencialmente 0,05% em peso ou menos, mais preferencialmente 0,01% em peso ou menos, mais preferencialmente 0,005% em peso ou menos, mais preferencialmente 0,001% em peso ou menos, mais preferencialmente 0,0005% em peso ou menos, e ainda mais preferencialmente 0,0001% em peso ou menos de um ou mais metais M com base no 100% em peso de YO₂. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, é adicionalmente preferencial que a mistura provida na etapa (1) e cristalizada na etapa (2) não contenha nenhum metal alcalino M.

[0078] A presente invenção compreende adicionalmente modalidades preferenciais do processo inventivo em que uma ou mais fontes de elementos adequadas para substituição isomórfica de pelo menos uma porção dos átomos Y e/ou dos átomos X na estrutura de treliça de zeólito com a estrutura em treliça do tipo CHA, é adicionada à mistura de acordo com a etapa (1). Com relação a isso, não há restrição particular de acordo com a presente Invenção, nem quanto ao tipo e/ou número, nem quanto à quantidade em que referida uma

ou mais fontes de um ou mais elementos adequados para substituição isomórfica pode se empregada. Assim, em princípio, qualquer um ou mais elementos adequados para substituição isomórfica podem se empregados considerando que eles são pelo menos parcialmente incorporados na estrutura de treliça do material zeolítico cristalizado na etapa (2) do processo inventivo. De acordo com modalidades preferenciais, o um ou mais elementos são selecionados a partir do grupo consistindo em B, Fe, Ti, Sn, Ga, Ge, Zr, V, Nb, Cu, Zn, Li, Be e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o um ou mais elementos são selecionados a partir do grupo consistindo em B, Fe, Ti, Sn, Zr, Cu e misturas de dois ou mais dos mesmos. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, o um ou mais elementos adequados para substituição isomórfica providos na etapa (1) compreendem Fe e/ou Cu, preferencialmente Fe, em que ainda mais preferencialmente o um ou mais elementos são Fe e/ou Cu. De acordo com modalidades da presente invenção que são particularmente preferenciais, Cu é adicionado como o elemento adequado para substituição isomórfica de pelo menos uma porção dos átomos Y e/ou dos átomos X na mistura, de acordo com a etapa (1).

[0079] Como notado acima, nenhuma restrição particular se aplica com relação à quantidade da uma ou mais fontes para substituição isomórficas preferencialmente providas na mistura na etapa (1) do processo inventivo. Assim, para fins de exemplo, a razão molar de YO_2 para o um ou mais elementos adequados para substituição isomórfica na mistura da etapa (1) do processo inventivo pode ser compreendida na faixa de qualquer número de 5 a 200, em que é preferível que referida razão seja compreenda na faixa de 10 a 100, mais preferencialmente de 20 a 70, e ainda preferencialmente de 25 a 50. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção em que um ou mais elementos adequados para substituição isomórfica são incluídos na mistura da etapa (1), é preferível que a razão molar de YO_2 para referido um ou

mais elementos seja compreendida na faixa de 30 a 40.

[0080] A presente invenção se refere adicionalmente a um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA que é obtida tanto pelo processo de acordo com a presente invenção, como por qualquer processo concebível que possa levar a um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA como pode ser obtido de acordo com o processo inventivo, em que, em particular, o processo inventivo designa quaisquer modalidades preferenciais e particulares do mesmo como definido na presente aplicação.

[0081] Além disso, a presente invenção também se refere a um material zeolítico sintético com uma estrutura em treliça do tipo CHA, preferencialmente obtenível e/ou obtido de acordo com o processo de quaisquer das reivindicações 1 a 24, em que a estrutura em treliça do tipo CHA compreende YO_2 e X_2O_3 , em que Y é um elemento tetravalente e X é um elemento trivalente, e em que o espectro de IR do material zeolítico compreende:

uma primeira banda de absorção (B1) na faixa de 3,720 a 3,740 cm^{-1} ; e

uma segunda banda de absorção (B2) na faixa de 1,850 a 1,890 cm^{-1} ;

em que a razão de absorção máxima da primeira banda de absorção para a segunda banda de absorção B1:B2 é compreendida na faixa de 0,5 a 1,55, preferencialmente de 0,8 a 1,45, mais preferencialmente de 1,0 a 1,4, mais preferencialmente de 1,1 a 1,38, mais preferencialmente de 1,2 a 1,37, mais preferencialmente de 1,3 a 1,36, e mais preferencialmente de 1,33 a 1,35.

[0082] Com relação à primeira banda de absorção (B1) na faixa de 3,720 a 3,740 cm^{-1} , referida banda é atribuída à vibração de alongamento de grupos hidroxil a partir do silanol quase isolado ou isolado no material zeolítico, e em particular a partir dos grupos de silanol de superfície. De acordo com a presente invenção, é preferível que a primeira banda de absorção (B1) esteja na

faixa de 3,722 a 3,738 cm⁻¹, mais preferencialmente de 3,724 a 3,736 cm⁻¹, mais preferencialmente de 3,726 a 3,734 cm⁻¹, mais preferencialmente de 3,728 a 3,733 cm⁻¹, e mais preferencialmente de 3,729 a 3,732 cm⁻¹. No que se refere à segunda banda de absorção (B2) na faixa de 1,850 a 1,890 cm⁻¹, por um lado, é preferível que referida absorção esteja na faixa de 1,855 a 1,885 cm⁻¹, mais preferencialmente de 1,860 a 1,880 cm⁻¹, mais preferencialmente de 1,865 a 1,875 cm⁻¹, e mais preferencialmente de 1,870 a 1,872 cm⁻¹. Assim, de acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que a primeira banda de absorção (B1) esteja na faixa de 3,722 a 3,740 cm⁻¹ e a segunda banda de absorção (B2) esteja na faixa de 1,855 a 1,885 cm⁻¹, mais preferencialmente que (B1) esteja na faixa de 3,724 a 3,740 cm⁻¹ e (B2) esteja na faixa de 1,860 a 1,880 cm⁻¹, mais preferencialmente que (B1) esteja na faixa de 3,726 a 3,740 cm⁻¹ e (B2) esteja na faixa de 1,865 a 1,875 cm⁻¹, mais preferencialmente que (B1) esteja na faixa de 3,728 a 3,740 cm⁻¹ e (B2) esteja na faixa de 1,870 a 1,872 cm⁻¹, e mais preferencialmente que (B1) esteja na faixa de 3,729 a 3,740 cm⁻¹ e (B2) esteja na faixa de 1,870 a 1,872 cm⁻¹.

[0083] Com relação ao estado do material zeolítico sintético com uma estrutura em treliça do tipo CHA a partir da qual o espectro de IR é obtido, em geral, nenhuma restrição particular se aplica para os materiais zeolíticos sintéticos da presente invenção tal que os valores das bandas de absorção e a razão da absorção máxima se a primeira e a segunda banda de absorção no espectro de IR, como definido na presente aplicação, pode se referir ao espectro de IR do material zeolítico sintético, como obtido diretamente após cristalização ou após qualquer trabalho adequado dos mesmos por uma ou mais etapas de lavagem, secagem e calcinação adequadas. De acordo com a presente invenção, é preferencial, no entanto, que o espectro de IR seja diretamente obtido a partir do material zeolítico como cristalizado, em que, após isolamento, lavagem e secagem dos mesmos, o material tenha apenas sido submetido à

calcinação para remoção do modelo orgânico, em que, preferencialmente calcinação tenha sido conduzida de acordo com quaisquer das modalidades preferenciais e particulares, como definido no presente pedido, em que mais preferencialmente calcinação foi conduzida em 550 °C por uma duração de 5h sob ar.

[0084] Com relação às características físicas e/ou químicas adicionais do material zeolítico sintético de acordo com a presente invenção, nenhuma restrição particular se aplica, considerando que o material zeolítico exibe uma estrutura em treliça do tipo CHA e que o espectro de IR do material zeolítico sintético exibe bandas de absorção, de acordo com quaisquer das modalidades particulares e preferenciais da presente invenção, como definido no presente pedido. Consequentemente, com relação ao tamanho de partícula médio do material zeolítico, ele pode exibir consequentemente qualquer tamanho de partícula concebível e, em particular, qualquer tamanho de partícula concebível D10 e/ou D50 e/ou D90. Dentro do significado da presente invenção, os termos “D10”, “D50” e “D90”, respectivamente, se referem ao tamanho de partícula me número do material zeolítico sintético da presente invenção, em que D10 se refere ao tamanho de partícula em que 10% das partículas do material zeolítico por número se apresentam abaixo de referido valor, D50 se refere ao tamanho de partícula em que 50% das partículas do material zeolítico por número se encontram abaixo de referido valor, e D90, consequentemente, se refere ao tamanho de partícula em que 90% das partículas do material zeolítico por número se encontra abaixo de referido tamanho de partícula.

[0085] No que se refere ao tamanho de partícula D10 do material zeolítico inventivo, nenhuma restrição particular se aplica de tal modo que, para fins de exemplo, o tamanho de partícula D10 do material zeolítico pode ser compreendido na faixa de qualquer número de 500 a 2.500 nm. De acordo com a presente Invenção, é, no entanto, preferencial que o tamanho de partícula D10

do material zeolítico se encontra dentro da faixa de 600 a 2.000 nm, mais preferencialmente de 800 a 1.800 nm, mais preferencialmente de 1.000 a 1.600 nm, e mais preferencialmente de 1.200 a 1.500 nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula D10 do material zeolítico se encontra dentro da faixa de 1.300 a 1.400 nm.

[0086] De acordo com a presente invenção, é preferencial de maneira alternativa que o tamanho de partícula D10 do material zeolítico se encontra dentro da faixa de 200 a 1.000 nm, mais preferencialmente de 250 a 800 nm, mais preferencialmente de 300 a 600 nm, e mais preferencialmente de 325 a 500 nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula D10 do material zeolítico se encontra dentro da faixa de 350 a 450 nm.

[0087] Com relação ao tamanho de partícula médio D50 do material zeolítico inventivo, o mesmo se aplica consequentemente tal que, em princípio, referidos valores podem adotar qualquer valor concebível. Assim, para fins de exemplo, o tamanho de partícula médio D50 do material zeolítico pode ser compreendido na faixa de 700 a 3.500 nm, em que preferencialmente o tamanho de partícula médio D50 se encontra na faixa de 900 a 3.000 nm, mais preferencialmente de 1.100 a 2.800 nm, mais preferencialmente de 1.300 a 2.500 nm, mais preferencialmente de 1.500 a 2.200 nm, mais preferencialmente de 1.550 a 2.000 nm, e mais preferencialmente de 1.600 a 1.900 nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula médio D50 do material zeolítico inventivo se encontra na faixa de 1.650 a 1.850 nm.

[0088] De acordo com a presente invenção, é alternativamente preferencial que o tamanho de partícula D50 do material zeolítico se encontre dentro da faixa de 400 a 1.400 nm, mais preferencialmente de 450 a 1.100 nm, mais preferencialmente de 500 a 900 nm, e mais preferencialmente de 525 a 700

nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula D50 do material zeolítico se encontre dentro da faixa de 550 a 650 nm.

[0089] Como mencionado anteriormente com relação ao tamanho de partículas D10 e D50, em geral, nenhuma restrição particular se aplica em relação ao tamanho de partícula D90, bem como que o material zeolítico inventivo pode adotar qualquer valor de tamanho de partícula concebível D90. Assim, para fins de exemplo, o tamanho de partícula D90 do material zeolítico inventivo pode ser compreendido na faixa de qualquer número de 900 a 4.500 nm, em que é preferível que o tamanho de partícula D90 seja compreendido na faixa de 1.100 a 4.000 nm, mais preferencialmente de 1.400 a 3.800 nm, mais preferencialmente de 1.600 a 3.500 nm, mais preferencialmente de 1.800 a 3.200 nm, mais preferencialmente de 2.000 a 2.900 nm, mais preferencialmente de 2.100 a 2.700 nm, mais preferencialmente de 2.200 a 2.600 nm, e mais preferencialmente de 2.250 a 2.550 nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula D90 do material zeolítico seja compreendido na faixa de 2.300 a 2.500 nm.

[0090] De acordo com a presente invenção, é alternativamente preferencial que o tamanho de partícula D90 do material zeolítico se encontra dentro da faixa de 800 a 2.000 nm, mais preferencialmente de 1.000 a 1.700 nm, mais preferencialmente de 1.100 a 1.500 nm, e mais preferencialmente de 1.150 a 1.300 nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula D90 do material zeolítico se encontra dentro da faixa de 1.200 a 1.250 nm.

[0091] Como para a determinação de espectros de IR dos materiais zeolíticos inventivos, em princípio nenhuma restrição particular se alicia quanto ao estado doe material zeolítico em que o tamanho de partícula D10 e/ou D50 e/ou D90 é determinado. Assim, dentro do significado da presente invenção, o

tamanho de partícula D10 e/ou D50 e/ou D90 do material zeolítico inventivo se refere ao respectivo tamanho de partícula do material zeolítico, tanto no estado como cristalizado ou após ter sido submetido a qualquer trabalho adequado do mesmo por qualquer uma ou mais etapas de lavagem, secagem e calcinação. De acordo com a presente invenção, no entanto, é preferencial que o tamanho de partícula D10 e/ou D50 e/ou D90 seja diretamente obtido a partir do material zeolítico como cristalizado em que, preferencialmente, o material zeolítico não foi submetido a qualquer tratamento adicional após outra cristalização além do isolamento opcional, lavagem opcional e/ou secagem opcional. Assim, de acordo com a presente invenção, é adicionalmente preferencial que o tamanho de partícula D10 e/ou D50 e/ou D90, como definido no presente pedido, seja diretamente obtido a partir do material zeolítico como cristalizado após isolamento, lavagem e/ou secagem dos mesmos, e, preferencialmente, após isolamento, lavagem e secagem dos mesmos. É, no entanto, adicionalmente preferencial, de acordo com a presente invenção, que o tamanho de partícula D10 e/ou D50 e/ou D90 seja diretamente obtido a partir do material zeolítico como cristalizado em que após isolamento, lavagem e secagem dos mesmos, o material apenas foi submetido à calcinação para remoção do modelo orgânico, em que, preferencialmente, a calcinação foi conduzida de acordo com quaisquer das modalidades preferenciais e particulares, como definido no presente pedido, em que mais preferencialmente, a calcinação foi conduzida em 550 °C por um duração de 5h sob ar.

[0092] De acordo com a presente invenção, é adicionalmente preferencial que o tamanho de partícula D10, o tamanho de partícula médio D50 e o tamanho de partícula D90 do material zeolítico é compreendido dentro de faixas definidas, em que o tamanho de partícula D10 do material zeolítico é compreendido na faixa de 1.200 a 1.500 nm, mais preferencialmente de 1.250 a 1.450 nm, e mais preferencialmente de 1.300 a 1.400 nm, e o tamanho de

partícula médio D50 do material zeolítico é compreendido na faixa de 1.550 a 1.950 nm, preferencialmente de 1.600 a 1.900 nm, e mais preferencialmente de 1.650 a 1.850 nm, e o tamanho de partícula D90 do material zeolítico é compreendido na faixa de 2.000 a 2.900 nm, preferencialmente de 2.100 a 2.700 nm, mais preferencialmente de 2.200 a 2.600 nm, mais preferencialmente de 2.250 a 2.550 nm, e mais preferencialmente de 2.300 a 2.500 nm. Mais preferencialmente, é preferencial que o tamanho de partícula D10 do material zeolítico seja compreendido na faixa de 1.200 a 1.500 nm, o tamanho de partícula médio D50 do material zeolítico é compreendido na faixa de 1.550 a 1.950 nm, e o tamanho de partícula D90 do material zeolítico é compreendido na faixa de 2.000 a 2.900 nm, preferencialmente de 2.100 a 2.700 nm. Mais preferencialmente, o tamanho de partícula D10 do material zeolítico é compreendido na faixa de 1.250 a 1.450 nm, o tamanho de partícula médio D50 é compreendido na faixa de 1.600 a 1.900 nm e o tamanho de partícula D90 é compreendido na faixa de 2.200 a 2.600 nm, mais preferencialmente de 2.250 a 2.550 nm. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que o tamanho de partícula D10 do material zeolítico seja compreendido na faixa de 1.300 a 1.400 nm, o tamanho de partícula médio D50 na faixa de 1.650 a 1.850 nm, e o tamanho de partícula D90 é compreendido na faixa de 2.300 a 2.500 nm.

[0093] De acordo com a presente invenção, é alternativamente preferencial que o tamanho de partícula D10, o tamanho de partícula médio D50 e o tamanho de partícula D90 do material zeolítico sejam compreendidos dentro das faixas definidas, em que o tamanho de partícula D10 do material zeolítico é compreendido na faixa de 325 a 500 nm, e o tamanho de partícula médio D50 do material zeolítico é compreendido na faixa de 525 a 700 nm, e o tamanho de partícula D90 do material zeolítico é compreendido na faixa de 800 a 2.000 nm. Mais preferencialmente, é preferencial que o tamanho de partícula D10 do

material zeolítico seja compreendido na faixa de 350 a 450 nm, o tamanho de partícula médio D50 do material zeolítico é compreendido na faixa de 550 a 650 nm, e o tamanho de partícula D90 do material zeolítico é compreendido na faixa de 1.100 a 1.500 nm.

[0094] De acordo com a presente invenção, é preferencial que pelo menos uma porção dos átomos Y e/ou dos átomos X da estrutura em treliça do tipo CHA dos materiais zeolíticos seja substituída de maneira isomórfica por um ou mais elementos. Com relação a isso, não há restrição particular quanto o um ou mais elementos que podem substituir átomos Y e/ou átomos X da estrutura em treliça do tipo CHA em que, preferencialmente, referidos elementos são selecionados a partir do grupo consistindo em B, Fe, Ti, Sn, Ga, Ge, Zr, V, Nb, Cu, Zn, Li, Be e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que, ainda mais preferencialmente, o um ou mais elementos são selecionados a partir do grupo consistindo em B, Fe, Ti, Sn, Zr, Cu e misturas de dois ou mais dos mesmos. De acordo com as modalidades particularmente preferenciais e, em particular, de acordo com as modalidades particularmente preferenciais do material zeolítico alternativo da presente invenção, pelo menos uma porção dos átomos Y e/ou dos átomos X na estrutura em treliça do tipo CHA é substituída de maneira isomórfica por Fe e/ou Cu e, preferencialmente, por Cu.

[0095] Com relação à quantidade do um ou mais elementos nos materiais zeolíticos que substituem pelo menos uma porção dos átomos Y e/ou dos átomos X na estrutura em treliça do tipo CHA, nenhuma restrição particular se aplica de acordo com a presente invenção. Assim, para fins de exemplo, a razão molar de YO_2 para o um ou mais elementos substituídos de maneira isomórfica na estrutura em treliça do tipo CHA pode variar em qualquer número de 2 a 100, em que a razão molar é preferencialmente compreendida na faixa de 5 a 50, mais preferencialmente de 8 a 30, mais preferencialmente de 10 a 20, e ainda mais preferencialmente de 13 a 15. De acordo com as modalidades

particularmente preferenciais, a razão molar de YO₂ para o um ou mais elementos substituindo de maneira isomórfica os átomos Y e/ou átomos X na estrutura em treliça do tipo CHA é compreendida na faixa de 13 a 15.

[0096] Com relação à estrutura em treliça do tipo CHA do material zeolítico inventivo, apesar de YO₂ e X₂O₃ contidos nela como elementos de treliça, nenhuma restrição particular se aplica quanto a quaisquer outros elementos que podem ser contidos nela como elementos de treliça adicionais. Assim, apesar ou em adição aos elementos preferenciais adequados para substituição isomórfica, de acordo com as modalidades preferenciais e particulares da presente invenção, que podem ser contidas na estrutura em treliça do tipo CHA do material zeolítico, quaisquer um ou mais elementos adicionais além dos mencionados acima também podem ser contidos nela como elementos de treliça em adição ao um ou mais elementos tetravalentes Y e ao um ou mais elemento trivalentes X. De acordo com as modalidades particulares da presente invenção, no entanto, é preferencial que o material zeolítico com uma treliça do tipo CHA não contém qualquer quantidade substancial de P e/ou As nela como elemento de treliça. Dentro do significado da presente invenção, o termo “substancial” com relação à quantidade de um elemento contido na estrutura de treliça do material zeolítico inventivo preferencialmente indica uma quantidade de 5% em peso ou menos de um elemento de treliça com base em 100% em peso de YO₂ contido na estrutura de treliça, preferencialmente uma quantidade de 1% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,5% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,1% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,05% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,01% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,005% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,001% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,0005% em peso ou menos, e ainda mais preferencialmente de 0,0001% em peso ou menos de um elemento de treliça

com base em 100% em peso de YO₂.

[0097] De acordo com referidas modalidades particularmente preferenciais em que o material zeolítico com uma treliça do tipo CHA não contém qualquer quantidade substancial de P e/ou As, é adicionalmente preferencial de acordo com a presente invenção que a treliça do tipo CHA não contém qualquer quantidade substancial de um ou mais elementos selecionados a partir do grupo consistindo em P, As, V e combinações de dois ou mais dos mesmos, e mais preferencialmente na quantidade substancial de qualquer um ou mais elementos selecionados a partir do grupo consistindo em P, As, Sb, Bi, V, Nb, Ta e combinações de dois ou mais dos mesmos. De acordo com ainda outras modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, o material zeolítico inventivo com uma estrutura em treliça do tipo CHA não contém qualquer quantidade substancial de quaisquer elementos pentavalentes Z como elemento de treliça.

[0098] É adicionalmente preferencial, de acordo com a presente invenção, que o material zeolítico não compreenda qualquer quantidade substancial de SSZ-13 e/ou SSZ-15, em que, dentro do significado da presente invenção, “substancial” com relação à quantidade de SSZ-13 e/ou SSZ-15 se refere a uma quantidade de 5% em peso ou menos do mesmo, com base em 100% em peso do material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA, de acordo com quaisquer modalidades preferenciais e particulares da presente invenção, e preferencialmente a uma quantidade de 1% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,5% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,1% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,05% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,01% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,005% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,001% em peso ou menos, mais preferencialmente de 0,0005% em peso ou menos, e ainda mais preferencialmente de 0,0001% em peso ou menos de SSZ-13 e/ou SSZ-15.

[0099] Com relação à razão molar $\text{YO}_2:\text{X}_2\text{O}_3$ exibida pelos materiais zeolíticos da presente invenção, qualquer razão molar concebível pode ser adotada. Assim, para fins de exemplo, a razão molar $\text{YO}_2:\text{X}_2\text{O}_3$ dos materiais inventivos pode ser compreendida em qualquer lugar na faixa de 4 a 200, em que preferencialmente a razão molar de $\text{YO}_2:\text{X}_2\text{O}_3$ é compreendida na faixa de 10 a 100, mais preferencialmente de 16 a 60, mais preferencialmente de 20 a 40, e ainda mais preferencialmente de 23 a 35. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, a razão molar $\text{YO}_2:\text{X}_2\text{O}_3$ dos materiais zeolíticos é compreendida na faixa de 25 a 30.

[00100] De acordo com a presente invenção, os materiais zeolíticos tendo uma estrutura em treliça do tipo CHA compreende YO_2 . Em princípio, Y representa qualquer elemento tetravalente concebível, Y representando vários elementos tetravalentes. Elementos tetravalentes preferenciais, de acordo com a presente invenção, incluem Si, Sn, Ti, Zr e Ge e combinações dos mesmos. Mais preferencialmente, Y representa Si, Ti ou Zr ou qualquer combinação de referidos elementos tetravalentes, ainda mais preferencialmente Si, e/ou Sn. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que Y represente Si.

[00101] Com relação a X_2O_3 opcionalmente compreendido na estrutura de treliça CHA dos materiais zeolíticos, X pode, em princípio, representar qualquer elemento trivalente concebível, em que X representa um ou vários elementos trivalentes. Elementos trivalentes preferenciais, de acordo com a presente invenção, incluem Al, B, In e Ga e combinações dos mesmos. Mais preferencialmente, X representa Al, B ou Ga ou qualquer combinação de referidos elementos trivalentes, ainda mais preferencialmente Al e/ou B. De acordo com a presente invenção, é particularmente preferencial que X represente Al.

[00102] Em adição aos elementos de treliça dos materiais

zeolíticos da presente invenção com uma estrutura em treliça do tipo CHA, referidos materiais zeolíticos preferencialmente contém adicionalmente um ou mais tipos de elementos não de treliça que não constituem a estrutura de treliça e estão consequentemente presentes nos poros e/ou cavidades formadas pela estrutura de treliça e típico de materiais zeolíticos em geral. Com relação a isso, não há restrição particular quanto aos tipos de elementos não de treliça que podem ser contidos nos materiais zeolíticos, nem com relação à quantidade em que eles podem estar presentes nela. É, portanto, preferencial que os materiais zeolíticos compreendam um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos como elementos iônicos não de treliça, em que, novamente, nenhuma restrição particular se aplica quanto ao tipo ou número de diferentes tipos de elementos iônicos não de treliça, que podem estar presentes nos materiais zeolíticos, nem quanto à sua respectiva quantidade. De acordo com modalidades preferenciais da presente invenção, os elementos iônicos não de treliça preferencialmente compreendem um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos selecionados a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Mg, Sr, Zr, Cr, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ru, Rh, Pd, Ag, Os, Ir, Pt, Au e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que, mais preferencialmente, esses são selecionados a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Mg, Sr, Cr, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Mg, Cr, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, os elementos iônicos não de treliça compreendem um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos selecionados a partir do grupo consistindo em Mg, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos compreendem Cu e/ou Fe, preferencialmente Cu, em que ainda mais preferencialmente o um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos consistem em

Cu e/ou Fe, preferencialmente em Cu.

[00103] Com relação às quantidades em que o um ou mais elementos não de treliça podem ser contidas nos materiais zeolíticos inventivos, de acordo com quaisquer das modalidades preferenciais e particulares da presente invenção, nenhuma restrição geral se aplica, tal que, em princípio, qualquer quantidade adequada de um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos podem ser contidas como elemento não de treliça nela. Assim, para fins de exemplo, o um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos compreendidos como elementos iônicos não de treliça nos materiais zeolíticos inventivos podem ser contidos nela em uma quantidade variando em qualquer lugar de 0,01 a 25% em peso com base em 100% em peso de YO₂ compreendido no material zeolítico, em que, preferencialmente, o um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos são contidos no material zeolítico em uma quantidade variando de 0,05 a 15,0% em peso, e mais preferencialmente de 0,1 a 10,0% em peso, mais preferencialmente de 0,5 a 6,0% em peso, mais preferencialmente de 1,0 a 4,0% em peso, mais preferencialmente de 1,5 a 3,5% em peso, e mais preferencialmente de 2,0 a 3,0% em peso. De acordo com a presente invenção, no entanto, é particularmente preferencial que o um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos sejam contidos no material zeolítico inventivo em uma quantidade variando de 2,3 a 2,7% em peso com base em 100% em peso de YO₂ compreendido no material zeolítico.

[00104] Com relação ao RMN de ²⁷Al MAS dos materiais zeolíticos inventivos com a estrutura em treliça do tipo CHA compreendendo X₂O₃ em que X inclui Al ou é preferencialmente Al, não há restrição particular quanto ao número e/ou respectivos valores em ppm e/ou intensidades relativas dos sinais que podem ser compreendidos no espectro de RMN. De acordo com a presente invenção, no entanto, é preferencial que o espectro de RMN de ²⁷Al MAS dos materiais inventivos comprehendam um primeiro pico (P1) compreendida na faixa

de 55,0 a 61,5 ppm e um segundo pico (P2) compreendido na faixa de -0,0 a -7,0 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico no espectro de RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico preferencialmente oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 de 1:(0,005–0,17). Mais preferencialmente, o primeiro pico (P1) é compreendido na faixa de 56,0 a 60,5 ppm, e o segundo pico (P2) é compreendido na faixa de -0,5 a -6,0 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 de 1:(0,01–0,16). Mais preferencialmente, o primeiro pico (P1) é compreendido na faixa de 56,5 a 60,0 ppm e o segundo pico (P2) é compreendido na faixa de -1,0 a -5,5 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 de 1:(0,03–0,15). Mais preferencialmente, o primeiro pico (P1) é compreendido na faixa de 57,0 a 59,5 ppm e o segundo pico (P2) é compreendido na faixa de -1,5 a -5,0 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 de 1:(0,05–0,145). Mais preferencialmente, o primeiro pico (P1) é compreendido na faixa de 57,5 a 59,0 ppm e o segundo pico (P2) é compreendido na faixa de -2,0 a -4,5 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 de 1:(0,08–0,14). Mais preferencialmente, o primeiro pico (P1) é compreendido na faixa de 57,8 a 58,7 ppm e o segundo pico (P2) é compreendido na faixa de -2,3 a -4,1 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 de 1:(0,10–0,135). Mais preferencialmente, o primeiro pico (P1) é compreendido na faixa de 58,0 a 58,5 ppm e o segundo pico (P2) é compreendido na faixa de -2,5 a -3,8 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 de 1:(0,11–0,13). De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, o RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico compreende um primeiro pico (P1) compreendido na faixa de 58,1 a 58,3 ppm e um segundo pico

(P2) compreendido na faixa de -2,7 a -3,6 ppm, preferencialmente na faixa de -2,8 a -3,4 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico no RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico preferencialmente oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 de 1:(0,115–0,125).

[00105] Não há restrição particular de acordo com a presente invenção quanto ao estado em que o material zeolítico é submetido ao experimento de RMN de ^{27}Al MAS. No entanto, é preferencial que, em particular, com relação à intensidade do primeiro e do segundo pico observou, no espectro de RMN de ^{27}Al MAS, que o material zeolítico inventivo com uma estrutura em treliça do tipo CHA não foi submetido a um tratamento de desaluminação ou, ainda mais preferencialmente, a qualquer tratamento suscetível de influenciar substancialmente o conteúdo de alumínio de treliça presente no material zeolítico como cristalizado. Consequentemente, de acordo com uma modalidade particularmente preferencial da presente invenção, o RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico, de acordo com quaisquer das modalidades preferenciais e particulares em que X compreende Al, se refere a um espectro de RMN de ^{27}Al MAS e aos valores de acordo obtidos nele em que o material zeolítico não foi submetido a qualquer tratamento pós-sintético e é, portanto, um material zeolítico como cristalizado não tratado. De acordo com a presente invenção, portanto, é adicionalmente preferencial que o RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico, de acordo com quaisquer das modalidades preferenciais e particulares em que X compreende Al, se refere ao espectro de RMN de ^{27}Al MAS e com os valores de acordo obtidos nele, obtidos a partir do material zeolítico como cristalizado, em que após isolamento, lavagem e secagem dos mesmos, o material foi apenas submetido à calcinação para remoção do modelo orgânico, em que preferencialmente calcinação foi conduzida de acordo com quaisquer das modalidades preferenciais e particulares, como definido no presente pedido, em que mais preferencialmente calcinação foi conduzida em 550 °C por uma

duração de 5h sob arr.

[00106] Portanto, modalidades do material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA são preferenciais de acordo com a presente invenção em que o RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico, e preferencialmente do material zeolítico como cristalizado não tratado, comprehende:

um primeiro pico (P1) na faixa de 55,0 a 61,5 ppm, preferencialmente de 56,0 a 60,5 ppm, mais preferencialmente de 56,5 a 60,0 ppm, mais preferencialmente de 57,0 a 59,5 ppm, mais preferencialmente de 57,5 a 59,0 ppm, mais preferencialmente de 57,8 a 58,7 ppm, mais preferencialmente de 58,0 a 58,5 ppm, e ainda mais preferencialmente de 58,1 a 58,3 ppm; e

um segundo pico (P2) na faixa de -0,0 a -7,0 ppm, mais preferencialmente de -0,5 a -6,0 ppm, mais preferencialmente de -1,0 a -5,5 ppm, mais preferencialmente de -1,5 a -5,0 ppm, mais preferencialmente de -2,0 a -4,5 ppm, mais preferencialmente de -2,3 a -4,1 ppm, mais preferencialmente de -2,5 a -3,8 ppm, mais preferencialmente de -2,7 a -3,6 ppm, e ainda mais preferencialmente de -2,8 a -3,4 ppm;

em que a integração do primeiro e do segundo pico no RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico preferencialmente oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 compreendida na faixa de 1:(0,005–0,17), mais preferencialmente de 1:(0,01–0,16), mais preferencialmente de 1:(0,03–0,15), mais preferencialmente de 1:(0,05–0,145), mais preferencialmente de 1:(0,08–0,14), mais preferencialmente de 1:(0,10–0,135), mais preferencialmente de 1:(0,11–0,13), e ainda mais preferencialmente de 1:(0,115–0,125).

[00107] Com relação ao RMN de ^{29}Si MAS do material zeolítico inventivo com a estrutura em treliça do tipo CHA comprehendendo YO_2 em que Y inclui Si ou é preferencialmente Si, não há restrição particular quanto ao número e/ou respectivos valores ppm e/ou intensidades relativas dos sinais exibidos no

espectro de RMN. De acordo com a presente invenção, no entanto, é preferencial que o RMN de ^{29}Si MAS compreende:

um primeiro pico (P'1) na faixa de -102,0 a -106,0 ppm, e
um segundo pico (P'2) na faixa de -108,0 a -112,5 ppm,
em que, mais preferencialmente, uma integração do primeiro e do segundo pico no RMN de ^{29}Si MAS do material zeolítico oferece uma razão dos valores de integração P'1:P'2 compreendida na faixa de 0,05 a 0,90. Mais preferencialmente, o primeiro pico (P'1) é compreendido na faixa de -102,5 a -105,5 ppm, e preferencialmente de -103,0 a -105,0 ppm, e o segundo pico (P'2) é na faixa de -109,0 a -111,5 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico preferencialmente oferece uma razão dos valores de integração P'1:P'2 compreendida na faixa de 0,10 a 0,70, e preferencialmente de 0,15 a 0,60. Mais preferencialmente, o primeiro pico (P'1) é compreendido na faixa de -103,2 a -104,8 ppm, e preferencialmente de -103,4 a -104,5 ppm e o segundo pico (P'2) é na faixa de -109,5 a -111,0 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico preferencialmente oferece uma razão dos valores de integração P'1:P'2 compreendida na faixa de 0,20 a 0,50, mais preferencialmente de 0,25 a 0,45. Mais preferencialmente, o primeiro pico (P'1) é compreendido na faixa de -103,6 a -104,3 ppm, e o segundo pico (P'2) é na faixa de -110,0 a -110,5 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico preferencialmente oferece uma razão dos valores de integração P'1:P'2 compreendida na faixa de 0,30 a 0,40, e mais preferencialmente de 0,32 a 0,38. De acordo com a presente invenção, no entanto, é particularmente preferencial que o RMN de ^{29}Si MAS do material zeolítico compreenda um primeiro pico (P'1) compreendido na faixa de -103,8 a -104,1 ppm e um segundo pico (P'2) na faixa de -110,2 a -110,3 ppm, em que a integração do primeiro e do segundo pico no RMN do material zeolítico preferencialmente oferece uma razão dos valores de integração P'1:P'2 compreendida na faixa de 0,34 a 0,36.

[00108] Não há restrição particular, de acordo com a presente invenção, quanto ao estado em que o material zeolítico é submetido ao experimento de RMN de ^{29}Si MAS. No entanto, é preferencial que os valores dados no presente pedido em relação ao espectro de RMN de ^{29}Si MAS sejam obtidos a partir do material zeolítico que não foi submetido a qualquer tratamento pós-sintético e é, portanto, um material zeolítico como cristalizado não tratado. De acordo com a presente invenção, no entanto, é preferencial que os valores dados no presente pedido em relação ao espectro de RMN de ^{29}Si MAS sejam diretamente obtidos a partir do material zeolítico como cristalizado, em que, após isolamento, lavagem e secagem dos mesmos, o material foi apenas submetido à calcinação para remoção do modelo orgânico, em que, preferencialmente, a calcinação foi conduzida de acordo com quaisquer das modalidades preferenciais e particulares, como definido no presente pedido, em que mais preferencialmente, a calcinação foi conduzida em 550 °C por uma duração de 5h sob ar.

[00109] Portanto, é preferencial, de acordo com a presente invenção, que o RMN de ^{29}Si MAS do material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA, como definido em quaisquer das modalidades preferenciais e particulares da presente invenção, compreende:

um primeiro pico (P'1) na faixa de -102,0 a -106,0 ppm, preferencialmente de -102,5 a -105,5 ppm, preferencialmente de -103,0 a -105,0 ppm, preferencialmente de -103,2 a -104,8 ppm, preferencialmente de -103,4 a -104,5 ppm, preferencialmente de -103,6 a -104,3 ppm, e ainda mais preferencialmente de -103,8 a -104,1 ppm; e

um segundo pico (P'2) na faixa de -108,0 a -112,5 ppm, preferencialmente de -109,0 a -111,5 ppm, preferencialmente de -109,5 a -111,0 ppm, preferencialmente de -110,0 a -110,5 ppm, e ainda mais preferencialmente de -110,2 a -110,3 ppm,

em que a integração do primeiro e do segundo pico no RMN de ^{29}Si MAS do material zeolítico preferencialmente oferece uma razão dos valores de integração P'1:P'2 compreendida na faixa de 0,05 a 0,90, preferencialmente de 0,10 a 0,70, mais preferencialmente de 0,15 a 0,60, mais preferencialmente de 0,20 a 0,50, mais preferencialmente de 0,25 a 0,45, mais preferencialmente de 0,30 a 0,40, mais preferencialmente de 0,32 a 0,38, e, ainda mais preferencialmente, de 0,34 a 0,36.

[00110] Não há restrição particular de acordo com a presente invenção quanto às características físicas e/ou químicas adequadas dos materiais zeolíticos inventivos. Assim, com relação, por exemplo, à porosidade e/ou área de superfície dos materiais inventivos, elas podem adotar quaisquer valores adequados. Assim, com relação à área de área de superfície BET dos materiais zeolíticos, como determinado de acordo com DIN 66135, ela pode variar consequentemente em qualquer número de 100 a 850 m²/g, em que, preferencialmente, a área de superfície dos materiais zeolíticos inventivos é compreendida na faixa de 300 a 800 m²/g, mais preferencialmente de 400 a 750 m²/g, mais preferencialmente de 500 a 700 m²/g, mais preferencialmente de 550 a 650 m²/g, e ainda mais preferencialmente de 580 a 620 m²/g. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, a área de superfície BET dos materiais zeolíticos, como determinado de acordo com DIN 66135 varia de 590 a 610 m²/g.

[00111] Em geral, não há restrição particular de acordo com a presente invenção quanto ao tipo os tipos específicos de materiais zeolíticos com uma treliça do tipo CHA, que pode ser contida no material zeolítico inventivo. Portanto, é preferencial que o material zeolítico inventivo comporte um ou mais zeólitos selecionados a partir do grupo consistindo em (Ni(deta)₂)-UT-6, Chabazita, |Li-Na| [Al-Si-O]-CHA, DAF-5, Na-Chabazita desidratado, K-Chabazita, LZ-218, Linde D, Linde R, Phi, SSZ-62, UiO-21, Willhendersonita, ZK-

14, ZYT-6 e combinações de dois ou mais dos mesmos. Mais preferencialmente, o material zeolítico inventivo com uma estrutura em treliça do tipo CHA compreende um ou mais zeólitos selecionados a partir do grupo consistindo em (Ni(deta)₂)-UT-6, Chabazita, |Li-Na| [Al-Si-O]-CHA, DAF-5, Na-Chabazita desidratado, K-Chabazita (Iran), LZ-218, Linde D, Linde R, Phi, SSZ-62, UiO-21, Willhendersonita, ZK-14, ZYT-6 e combinações de dois ou mais dos mesmos. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, o material zeolítico inventivo compreende Chabazita, em que ainda mais preferencialmente o material zeolítico inventivo de acordo com as modalidades preferenciais e particulares da presente invenção é Chabazita.

[00112] Dependendo das necessidades específicas de sua aplicação, o material zeolítico da presente invenção pode ser empregado tal que, como na forma de um pó, um pó de pulverização ou um granulado de pulverização obtido a partir de técnicas de separação descritas acima, por exemplo, decantação, filtração, centrifugação ou pulverização.

[00113] Em muitas aplicações industriais, é frequentemente desejado, por parte do usuário, não empregar o material zeolítico como material em pó ou pulverizado, ou seja, o material zeolítico obtido pela separação do material a partir de seu licor mãe, opcionalmente incluindo lavagem e secagem e calcinação subsequente, mas um material zeolítico que é adicionalmente processado para render moldagens. Tais moldagens são exigidas particularmente em muitos processos industriais, por exemplo, em muitos processos em que o material zeolítico da presente invenção é empregado como catalisador ou absorvente.

[00114] Consequentemente, a presente invenção também se refere a uma moldagem compreendendo o material zeolítico inventivo.

[00115] Em geral, o material em pó ou pulverizado podem ser formatados sem quaisquer outros compostos, por exemplo, ao compactar

adequadamente, para obter moldagens de uma geometria desejada, por exemplo, tabletes, cilindros, esferas ou similares.

[00116] Preferencialmente, o material em pó ou pulverizado é misturado com ou revestido por um ligante refratário adequado. Em geral, ligantes adequados são todos compostos, o que rende adesão e/ou coesão entre as partículas de material zeolítico a serem ligadas, o que vai além da fisionomia que pode estar presente sem um ligante. Exemplos de tais ligantes são óxidos de metal, tal como, por exemplo, SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2 , ZrO_2 ou MgO ou argilas ou misturas de dois ou mais desses compostos. Argilas ocorrendo naturalmente, que podem ser empregadas incluem a família de montmorillonita e de caulim, cujas famílias incluem as sub-bentonitas, e os caulinins comumente usados como argilas Dixie, McNamee, Georgia e Florida ou outras em que o constituinte mineral principal é haloisita, caulinita, dickita, nacrita ou anauxita. Tais argilas podem ser usadas no estado bruto como originalmente mineiradas ou inicialmente submetido à calcinação, tratamento com ácido ou modificação química. Em adição, o material zeolítico de acordo com a presente invenção pode ser composto com u material de matriz porosa, tal como sílica-alumina, sílica-magnésia, sílica-zircônia, sílica-tória, sílica-berília e sílica-titânia, bem como composições ternárias, tal como sílica-alumina-tória, sílica-alumina-zircônia, sílica-alumina-magnésia e sílica-magnésia-zircônia.

[00117] O material zeolítico da presente invenção pode, portanto, também ser provido na forma de extrudados, péletes, tabletes ou partículas de qualquer outro formato adequado, para uso como um leito embalado de catalisador particulado ou como peças formatadas, tal como placas, selas, tubos ou similar.

[00118] Também preferencialmente, o material em pó ou pulverizado, opcionalmente após mistura ou revestimento por um ligante refratário adequado, como descrito acima, é formado em uma lama, por exemplo,

com água, que é depositada mediante um veículo refratário adequado. A lama também pode compreender outros compostos, tal como, por exemplo, estabilizantes, antiespumantes, promotores ou similares. Tipicamente, o veículo comprehende um membro, frequentemente referido como um veículo "colmeia", compreendendo um ou mais corpos refratários com uma pluralidade de passagens de fluxo de gás paralelas se estendendo no comprimento. Tais veículos são bem conhecidos na técnica e podem ser feitos de qualquer material adequado, tal como cordierita ou o similar.

[00119] Em geral, o material zeolítico descrito acima pode ser usado como peneira molecular, absorvente, catalisador, suporte de catalisador ou ligante do mesmo. Por exemplo, o material zeolítico pode ser usado como peneira molecular para gases secos ou líquidos, para separação molecular seletiva, por exemplo, para a separação de hidrocarbonetos ou aminas; como trocador de íon; como veículo químico; como absorvente, em particular, como absorvente para a preparação de hidrocarbonetos ou aminas; ou como um catalisador. Mais preferencialmente, o material zeolítico de acordo com a presente invenção é usado como um catalisador e/ou como um suporte de catalisador.

[00120] De acordo com uma modalidade preferencial da presente invenção, o material zeolítico da invenção é usado em um processo catalítico, preferencialmente como um catalisador e/ou suporte de catalisador, e mais preferencialmente como um catalisador. Em geral, o material zeolítico da invenção pode ser usado como um catalisador e/ou suporte de catalisador em qualquer processo catalítico concebível, em que processos envolvendo a conversão de pelo menos um composto orgânico é preferencial, mais preferencialmente de compostos orgânicos compreendendo pelo menos uma ligação de carbono - carbono e/ou carbono - oxigênio e/ou carbono - nitrogênio, mais preferencialmente de compostos orgânicos compreendendo pelo menos

uma ligação de carbono - carbono e/ou carbono - oxigênio, e ainda mais preferencialmente de compostos orgânicos compreendendo pelo menos uma ligação de carbono - carbono. Em modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, o material zeolítico é usado como um catalisador e/ou suporte de catalisador em um processo de craqueamento catalítico de fluido (FCC).

[00121] Além disso, é preferencial de acordo com a presente invenção, que o material zeolítico seja usado como um catalisador para produzir olefinas leves a partir de matérias-primas não de petróleo por conversão de oxigenados, tal como álcoois inferiores (metanol, etanol), éteres (dimetil éter, metil etil éter), ésteres (dimetil carbonato, metil formato) e o similar às olefinas, e especialmente na conversão de álcoois inferiores às olefinas leves. De acordo com modalidades particularmente preferenciais, o material zeolítico da presente invenção é usado na conversão de metanol para olefina (MTO)

[00122] De acordo com uma modalidade adicional da presente invenção, o material zeolítico da invenção é preferencialmente usado em um processo catalítico envolvendo a conversão de pelo menos um composto compreendendo pelo menos uma ligação nitrogênio - oxigênio. Particularmente preferencial de acordo com a presente invenção é o uso do material zeolítico como um catalisador e/ou suporte de catalisador em um processo de redução catalítica seletiva (SCR) para a redução seletiva de óxidos de nitrogênio NO_x; para a oxidação de NH₃, em particular para a oxidação de deslize de NH₃ em sistemas a diesel; para a decomposição de N₂O. De acordo com modalidades particularmente preferenciais da presente invenção, o material zeolítico usado em um processo catalítico envolvendo a conversão de pelo menos um composto compreendendo pelo menos uma ligação nitrogênio - oxigênio compreende Cu e/ou Fe, e mais preferencialmente Cu.

[00123] Portanto, a presente invenção também se refere a um

método para reduzir seletivamente óxidos de nitrogênio NO_x ao entrar em contato com uma corrente contendo NO_x com um catalisador contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção sob condições de redução adequadas; para um método de oxidação de NH₃, em particular de oxidar deslize de NH₃ em sistemas a diesel, ao contatar uma corrente contendo NH₃ com um catalisador contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção sob condições de oxidação adequadas; para um método de decomposição de N₂O, ao contatar uma corrente contendo N₂O com um catalisador contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção sob condições de decomposição adequadas; para um método de controle de emissões em Sistemas de Emissão Avançados (*Advanced Emission Systems*), tal como motores de Ignição de Compressão de Carga Homogênea (*Homogeneous Charge Compression Ignition (HCCI)*) ao contatar uma corrente de emissão com um catalisador contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção sob condições adequadas; para um processo de FCC de craqueamento catalítico de fluido em que o material zeolítico de acordo com a presente invenção é empregado como aditivo; para um método de conversão de um composto orgânico ao contar referido composto com um catalisador contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção sob condições de conversão adequadas; para um processo de "fonte estacionária" em que a catalisador é empregado contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção.

[00124] Portanto, a presente invenção também se refere a um método para reduzir seletivamente os óxidos de nitrogênio NO_x, em que uma corrente gasosa contendo óxidos de nitrogênio NO_x, preferencialmente também contendo amônia e/ou ureia, é contatada com o material zeolítico de acordo com a presente invenção ou o material zeolítico obtidão ou obtido de acordo com a presente invenção, preferencialmente na forma de um catalisador moldado, ainda mais preferencialmente como um catalisador moldado em que o material

zeolítico é depositado em um veículo refratário adequado, ainda mais preferencialmente em um veículo "colmeia".

[00125] Os óxidos de nitrogênio, que são reduzidos usando um catalisador contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção ou o material zeolítico obtinível ou obtido de acordo com a presente invenção pode ser obtido por qualquer processo, por exemplo, como uma corrente de gás residual. Entre outros, correntes de gás residuais, como obtidas em processos para produzir ácido adípico, ácido nítrico, derivados de hidroxilamina, caprolactama, glioxal, metil-glioxal, ácido glioxílico ou em processos para queimar materiais nitrogenosos podem ser mencionados.

[00126] Mais preferencialmente, o material zeolítico de acordo com a presente invenção ou o material zeolítico obtinível ou obtido de acordo com a presente invenção é usado como um catalisador moldado, ainda mais preferencialmente como um catalisador moldado em que o material zeolítico é depositado em um veículo refratário adequado, ainda mais preferencialmente em um veículo "colmeia", para a redução seletiva de óxidos de nitrogênio NO_x, ou seja, para redução catalítica seletiva de óxidos de nitrogênio. Em particular, a redução seletiva de óxidos de nitrogênio, em que o material zeolítico de acordo com a presente invenção é empregado como material cataliticamente ativo, é realizada na presença de amônia ou ureia. Enquanto a amônia é o agente de redução de escolha para plantas de energia estacionária, ureia é o agente de redução de escolha para sistemas de SCR móveis. Tipicamente, o sistema de SCR é integrado ao projeto do motor e do veículo e, também tipicamente, contém os seguintes componentes principais: catalisador de SCR contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção; um tanque de armazenamento de ureia; uma bomba de ureia; um sistema de dosagem de ureia; um bocal/injetor de ureia; e uma respectiva unidade de controle.

[00127] Além disso, é preferencial, de acordo com a presente

invenção, que o material zeolítico seja usado como uma armadilha molecular para compostos orgânicos. Em geral, qualquer tipo de composto orgânico pode ser preso no material zeolítico, em que é preferencial que o composto seja preso de maneira reversível, tal que seja liberado posteriormente a partir do material zeolítico, preferencialmente em que o composto orgânico é liberado – preferencialmente sem conversão do mesmo – por um aumento em temperatura e/ou uma diminuição em pressão. Além disso, é preferencial que o material zeolítico seja usado para prender compostos orgânicos cujas dimensões permitem que eles penetrem o sistema microporoso da estrutura molecular. Ainda de acordo com modalidades adicionais da presente invenção, é preferencial que os compostos presos sejam liberados sob pelo menos conversão parcial dos mesmos para um derivado químico e/ou para um produto de decomposição dos mesmos, preferencialmente para um produto de decomposição térmica dos mesmos.

[00128] Quando preparando composições catalíticas específicas ou composições para diferentes propósitos, também é concebível mesclar o material zeolítico de acordo com a presente invenção com pelo menos um outro material cataliticamente ativo ou um material sendo ativo com relação ao propósito destinado. Também é possível mesclar pelo menos dois materiais inventivos diferentes que podem diferir em razão molar de $\text{YO}_2:\text{X}_2\text{O}_3$, e em particular em sua razão molar $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ e/ou na presença ou ausência de um ou mais metais adicionais, tal como um ou mais metais de transição e/ou nas quantidades específicas de um metal adicional, tal como um metal de transição, em que, de acordo com as modalidades particularmente preferenciais, o um ou mais metais de transição compreendam Cu e/ou Fe, mais preferencialmente Cu. Também é possível mesclar pelo menos dois materiais inventivos diferentes com pelo menos um outro material cataliticamente ativo ou um material sendo ativo com relação ao propósito destinado.

[00129] Também, o catalisador pode estar disposto em um substrato. O substrato pode ser qualquer de tais materiais tipicamente usados para preparar catalisadores, e poderá compreender de maneira geral uma estrutura colmeia de metal ou cerâmica. Qualquer substrato adequado pode ser empregado, tal como um substrato monolítico do tipo tendo passagens de fluxo de gás paralelas finas se estendendo no comprimento a partir de uma face de entrada ou uma face de saída do substrato, tal que passagens sejam abertas para o fluido fluir através (referidas como fluxo de colmeia através de substratos). As passagens, que são essencialmente vias retas a partir de sua entrada de fluido em sua saída de fluido, são definidas por paredes em que o material catalítico é disposto como cobertura de lavagem de modo que os gases fluindo através das passagens entram em contato com o material catalítico. As passagens de fluxo do substrato monolítico são canais de parede fina, que podem ser de qualquer tamanho e formato de seção transversal adequado, tais como trapezoidal, retangular, quadrado, sinusoidal, hexagonal, oval, circular, etc. Tais estruturas podem conter de 60 a cerca de 400 ou mais aberturas de entrada de gás (ou seja, células) por polegada quadrada (2,54 cm x 2,54 cm) de seção transversal.

[00130] O substrato também pode ser substrato de filtro de fluxo em parede, em que os canais são bloqueados de maneira alternativa, permitindo que a corrente gasosa entre nos canais a partir de uma direção (direção de entrada), para fluir através das paredes de canal e saem a partir dos canais a partir da outra direção (direção de saída). A composição de catalisador pode ser revestida no fluxo de passagem ou filtro de fluxo em parede. Se um substrato de fluxo em parede é utilizado, o sistema resultante será capaz de remover matéria particulada juntamente com poluentes gasosos. O substrato de filtro de fluxo em parede pode ser feito a partir de materiais comumente conhecidos na técnica, tal como cordierita, titanato de alumínio ou carboneto de silício. Será compreendido

que a carga da composição catalítica em um substrato de fluxo em parede dependerá das propriedades de substrato, tal como porosidade e espessura de parede, e tipicamente será inferior do que a carga em um substrato de passagem de fluxo.

[00131] O substrato cerâmico pode ser feito de qualquer material refratário, por exemplo, cordierita, cordierita-alumina, nitreto de silício, mulita de zircônio, espodumênio, alumina-sílica magnésia, silicato de zircônio, silimanita, um silicato de magnésio, zircônio, petalita, alfa-alumina, um aluminossilicato e similares.

[00132] Os substratos úteis para os catalisadores de modalidades da presente invenção também podem ser metálicos em natureza e ser compostos de um ou mais metais ou ligas metálicas. Os substratos metálicos podem ser empregados em vários formatos, tal como lâmina corrugada ou forma monolítica. Suportes metálicos adequados incluem os metais resistentes ao calor e ligas metálicas, tais como titânio e aço inoxidável, bem como outras ligas em que ferro é um componente substancial ou principal. Tais ligas podem conter um ou mais dentre níquel, cromo e/ou alumínio, e a quantidade total desses metais pode compreender vantajosamente pelo menos 15% em peso da liga, por exemplo, 10-25% em peso de cromo, 3-8% em peso de alumínio e até 20% em peso de níquel. As ligas também podem conter quantidades pequenas ou vestígios de um ou mais outros metais, tal como manganês, cobre, vanádio, titânio e similares. A superfície ou os substratos de metal podem ser oxidados em temperaturas altas, por exemplo, 1000 °C e mais, para aprimorar a resistência à corrosão das ligas ao formar uma camada de óxido nas superfícies dos substratos. Tal oxidação induzida por alta temperatura pode aumentar a aderência do suporte de óxido de metal refratário e promover cataliticamente componentes de metal para o substrato.

[00133] Em modalidades alternativas, o material zeolítico de

acordo com a presente invenção pode ser depositado em um substrato de espuma de célula aberta. Tais substratos são bem conhecidos na técnica, e são tipicamente formados de materiais metálicos ou cerâmicos refratários.

[00134] É especialmente preferencial o uso de um catalisador contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção ou o material zeolítico obtêvivel ou obtido de acordo com a presente invenção para remoção de óxidos de nitrogênio NO_x de gases de exaustão de motores de combustão interna, em particular, motores a diesel, que operam em condições de combustão com ar em excesso do requerido para combustão estequiométrica, ou seja, magra.

[00135] Portanto, a presente invenção também se refere a um método para remover óxidos de nitrogênio NO_x de gases de exaustão de motores de combustão interna, em particular motores a diesel, que operam em condições de combustão com ar em excesso do requerido para combustão estequiométrica, ou seja, em condições magras, em que um catalisador contendo o material zeolítico de acordo com a presente invenção ou o material zeolítico obtêvivel ou obtido de acordo com a presente invenção é empregado como material cataliticamente ativo.

[00136] A presente Invenção, portanto, se refere ao uso do material zeolítico da invenção, em particular no campo de catálise e/ou no tratamento de gás de exaustão, em que referido tratamento de gás de exaustão compreende tratamento de gás de exaustão catalítico e industrial. Nessas e em outras aplicações, o material zeolítico da presente invenção pode, para fins de exemplo, ser usado como uma peneira molecular, catalisador e/ou suporte de catalisador.

[00137] Em modalidades da presente invenção envolvendo o uso do material zeolítico da invenção em tratamento de gás de exaustão, o material zeolítico é preferencialmente usado no tratamento de industrial ou gás de exaustão catalítico, mais preferencialmente como uma peneira molecular em

referidas aplicações. Em uma modalidade particularmente preferencial, o material zeolítico usado em tratamento de gás de exaustão é compreendido em uma armadilha de hidrocarboneto.

[00138] Portanto, a presente invenção se refere adicionalmente ao uso de um material zeolítico de acordo com a presente invenção, e em particular de acordo com modalidades particularmente preferenciais e preferenciais da mesma como definido no presente pedido, como uma peneira molecular, como um absorvente, para troca de íon, como um catalisador e/ou como um suporte de catalisador, preferencialmente como um catalisador para a redução catalítica seletiva (SCR) de óxidos de nitrogênio NO_x; para a oxidação de NH₃, em particular para a oxidação de deslize de NH₃ em sistemas a diesel; para a decomposição de N₂O; como um aditivo em processos (FCC) de craqueamento catalítico fluido; e/ou como um catalisador em reações de conversão orgânica, preferencialmente na conversão de álcoois para olefinas, e mais preferencialmente em catálise de metanol para olefina (MTO). De acordo com a presente invenção, no entanto, é particularmente preferencial que o material zeolítico livre de modelo orgânico com uma estrutura em treliça do tipo CHA seja usado como um catalisador para a redução catalítica seletiva (SCR) de óxidos de nitrogênio NO_x.

[00139] A presente invenção inclui as seguintes modalidades, em que elas incluem as combinações específicas de modalidades como indicado pelas respectivas interdependências definidas aqui:

1. Um processo para a preparação de um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA compreendendo YO₂ e X₂O₃, em que referido processo compreende as etapas de:

(1) prover uma mistura compreendendo uma ou mais fontes para YO₂, uma ou mais fontes para X₂O₃, um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₁R₂R₃R₄N⁺, e um ou mais compostos contendo

cátions de tetra-alquilamônio R₅R₆R₇R₈N⁺ como agente de direcionamento de estrutura;

(2) cristalizar uma mistura obtida na etapa (1) para obter um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA;

em que Y é um elemento tetravalente e X é um elemento trivalente, em que R¹, R², R³, R⁴, R⁵, R⁶ e R⁷, independentes entre si, representam alquil, e em que R⁸ representa cicloalquil.

2. O processo da modalidade 1, em que a mistura provida na etapa (1) preferencialmente não contém qualquer quantidade substancial de uma fonte para Z₂O₅, em que Z é P, preferencialmente P e As, em que mais preferencialmente Z é qualquer elemento pentavalente que é uma fonte para Z₂O₅ na estrutura em treliça do tipo CHA cristalizada na etapa (2).

3. Processo da modalidade 1 ou 2, em que R¹, R², R³, R⁴, R⁵, R⁶ e R⁷, independentes entre si, representam alquil (C₁-C₆) opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados, preferencialmente alquil (C₁-C₅), mais preferencialmente alquil (C₁-C₄), mais preferencialmente alquil (C₁-C₃), e ainda mais preferencialmente para metil opcionalmente substituído ou etil, em que ainda mais preferencialmente R¹, R², R³, R⁴, R⁵, R⁶ e R⁷ representam metil opcionalmente substituído, preferencialmente metil não substituído.

4. O processo de qualquer das modalidades de 1 a 3, em que R⁸ representa opcionalmente cicloalquil de 5 a 8 membros opcionalmente substituído e/ou heterocíclico, preferencialmente cicloalquil de 5 a 7 membros, mais preferencialmente cicloalquil de 5 ou 6 membros, em que ainda mais preferencialmente R⁸ representa cicloalquil de 6 membros opcionalmente substituído e/ou opcionalmente heterocíclico, preferencialmente ciclohexil opcionalmente substituído, e mais preferencialmente ciclohexil não substituído.

5. O processo de qualquer das modalidades de 1 a 4, em que o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₅R₆R₇R₈N⁺

compreendem um ou mais compostos de *N,N,N*-tri(C₁-C₄)alquil-(C₅-C₇)cicloalquilamônio, preferencialmente um ou mais compostos de *N,N,N*-tri(C₁-C₃)alquil-(C₅-C₆)cicloalquilamônio, mais preferencialmente um ou mais compostos de *N,N,N*-tri(C₁-C₂)alquil-(C₅-C₆)cicloalquilamônio, mais preferencialmente um ou mais *N,N,N*-tri(C₁-C₂)alquil-ciclopentilamônio e/ou um ou mais compostos de *N,N,N*-tri(C₁-C₂)alquil-ciclohexilamônio, mais preferencialmente um ou mais compostos selecionados a partir de *N,N,N*-triethylciclohexilamônio, *N,N*-dietil-*N* -metil-ciclohexilamônio, *N,N*-dimetil-*N* -etilciclohexilamônio, compostos de *N,N,N* -trimetil-ciclohexilamônio e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₅R₆R₇R₈N⁺ compreendem um ou mais compostos de *N,N,N* -trimetil-ciclohexilamônio, e em que mais preferencialmente o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₅R₆R₇R₈N⁺ consistem em um ou mais compostos de *N,N,N* -trimetil-ciclohexilamônio.

6. O processo de qualquer das modalidades de 1 a 5, em que o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₁R₂R₃R₄N⁺ compreendem um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em compostos de tetra(C₁-C₆)aluilamônio, preferencialmente compostos de tetra(C₁-C₅)alquilamônio, mais preferencialmente compostos de tetra(C₁-C₄)alquilamônio e mais preferencialmente compostos de tetra(C₁-C₃)alquilamônio, em que, independentes entre si, os substituintes de alquil são opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados, e em que mais preferencialmente o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₁R₂R₃R₄N⁺ são selecionados a partir do grupo consistindo em compostos de tetrapropilamônio opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados, compostos de etiltripropilamônio, compostos de dietildipropilamônio, compostos de trietylpropilamônio, compostos de

etiltripropilamônio, compostos de dimetildipropilamônio, compostos de trimetilpropilamônio, compostos de tetraetilamônio, compostos de trietilmelilamônio, compostos de dietildimetilamônio, compostos de etiltrimetilamônio, compostos de tetrametilamônio e misturas de dois ou mais dos mesmos, preferencialmente a partir do grupo consistindo em compostos de tetraetilamônio opcionalmente substituídos e/ou opcionalmente ramificados, compostos de trietilmelilamônio, compostos de dietildimetilamônio, compostos de etiltrimetilamônio, compostos de tetrametilamônio e misturas de dois ou mais dos mesmos, preferencialmente a partir do grupo consistindo em compostos de tetrametilamônio opcionalmente substituídos, em que mais preferencialmente o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R_1R_2R_3R_4N^+$ compreendem um ou mais compostos de tetrametilamônio, e em que mais preferencialmente o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R_1R_2R_3R_4N^+$ consistem em um ou mais compostos de tetrametilamônio.

7. O processo de quaisquer das modalidades de 1 a 6, em que o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R_1R_2R_3R_4N^+$ e/ou o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R_5R_6R_7R_8N^+$ são sais, preferencialmente um ou mais sais selecionados a partir do grupo consistindo em haletos, preferencialmente cloreto e/ou brometo, mais preferencialmente cloreto, hidróxido, sulfato, nitrato, fosfato, acetato e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em cloreto, hidróxido, sulfato e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R_1R_2R_3R_4N^+$ e/ou o um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio $R_5R_6R_7R_8N^+$ são hidróxidos de tetra-alquilamônio e/ou cloretos, e ainda mais preferencialmente hidróxidos de tetra-alquilamônio.

8. O processo de qualquer das modalidades de 1 a 7 em que Y é selecionado a partir do grupo consistindo em Si, Sn, Ti, Zr, Ge e misturas de dois ou mais dos mesmos, Y preferencialmente sendo Si.

9. O processo de qualquer das modalidades de 1 a 8, em que a uma ou mais fontes para YO_2 compreende um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em sílica fumada, hidrossóis de sílica, sílicas sólidas amorfas reativas, sílica gel, ácido silícico, água vítreia, hidrato de metassilicato de sódio, sesquissilicato, dissilicato, sílica coloidal, ésteres de ácido silícico e misturas de dois ou mais dos mesmos, preferencialmente a partir do grupo consistindo em sílica fumada, hidrossóis de sílica, sílicas sólidas amorfas reativas, sílica gel, ácido silícico, sílica coloidal, ésteres de ácido silícico e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em sílica fumada, hidrossóis de sílica, sílicas sólidas amorfas reativas, sílica gel, sílica coloidal e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que ainda mais preferencialmente a uma ou mais fontes para YO_2 compreendem sílica fumada e/ou sílica coloidal, preferencialmente sílica coloidal.

10. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 9, em que X é selecionado a partir do grupo consistindo em Al, B, In, Ga e misturas de dois ou mais dos mesmos, X preferencialmente sendo Al e/ou B, e mais preferencialmente sendo Al.

11. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 10, em que a uma ou mais fontes para X_2O_3 compreende um ou mais compostos selecionados a partir do grupo consistindo em alumina, aluminatos, sais de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, preferencialmente a partir do grupo consistindo em alumina, sais de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em alumina, alumínio tri($\text{C}_1\text{-}\text{C}_5$)alcóxido, AlO(OH) , Al(OH)_3 , haletos de alumínio, preferencialmente fluoreto de alumínio e/ou cloreto e/ou brometo, mais

preferencialmente fluoreto de alumínio e/ou cloreto, e ainda mais preferencialmente cloreto de alumínio, sulfato de alumínio, fosfato de alumínio, fluorossilicato de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em alumínio tri(C₂-C₄)alcóxido, AlO(OH), Al(OH)₃, cloreto de alumínio, sulfato de alumínio, fosfato de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em alumínio tri(C₂-C₃)alcóxido, AlO(OH), Al(OH)₃, cloreto de alumínio, sulfato de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em tripropóxidos de alumínio, AlO(OH), sulfato de alumínio e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente a uma ou mais fontes para X₂O₃ compreende triisopropóxido de alumínio, e em que ainda mais preferencialmente a uma ou mais fontes para X₂O₃ consiste em triisopropóxido de alumínio.

12. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 11, em que a mistura de acordo com a etapa (1) compreende adicionalmente um ou mais solventes, em que referido um ou mais solventes preferencialmente compreendem água, preferencialmente água destilada, em que mais preferencialmente água é contida como o um ou mais solventes na mistura de acordo com a etapa (1), preferencialmente água destilada.

13. O processo de acordo com qualquer uma das modalidades de 1 a 12, em que a razão molar do um ou mais cátions de tetra-alquilamônio R¹R²R³R⁴N⁺:YO₂ na mistura provida de acordo com a etapa (1) varia de 0,005 a 0,5, preferencialmente de 0,01 a 0,25, mais preferencialmente de 0,03 a 0,2, mais preferencialmente de 0,05 a 0,15, mais preferencialmente de 0,07 a 0,12, mais preferencialmente de 0,08 a 0,1, e ainda mais preferencialmente de 0,085 a 0,010.

14. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 13, em que a razão molar do um ou mais cátions de tetra-alquilamônios

$R^5R^6R^7R^8N^+$: YO_2 na mistura provida de acordo com a etapa (1) varia de 0,001 a 2,0, preferencialmente de 0,005 a 1,0, mais preferencialmente de 0,01 a 0,5, mais preferencialmente de 0,03 a 0,3, mais preferencialmente de 0,05 a 0,25, mais preferencialmente de 0,07 a 0,22, mais preferencialmente de 0,08 a 0,2, mais preferencialmente de 0,09 a 0,19, e ainda mais preferencialmente de 0,10 a 0,18.

15. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 14, em que a razão molar $R^1R^2R^3R^4N^+$: $R^5R^6R^7R^8N^+$ do um ou mais cátions de tetra-alquilamônio $R^1R^2R^3R^4N^+$ para o um ou mais cátions de tetra-alquilamônios $R^5R^6R^7R^8N^+$ na mistura provida de acordo com a etapa (1) varia de 0,01 a 5, preferencialmente de 0,05 a 2, mais preferencialmente de 0,1 a 1,5, mais preferencialmente de 0,2 a 1,2, mais preferencialmente de 0,3 a 1,1, mais preferencialmente de 0,4 a 0,1, mais preferencialmente de 0,45 a 0,65, e ainda mais preferencialmente de 0,5 a 0,9.

16. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 15, em que a cristalização na etapa (2) envolve aquecer a mistura, preferencialmente em uma temperatura variando de 90 a 250 °C, preferencialmente de 100 a 220 °C, mais preferencialmente de 130 a 200 °C, mais preferencialmente de 150 a 190 °C, mais preferencialmente de 160 a 180 °C, e ainda mais preferencialmente de 165 a 175 °C.

17. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 16, em que a cristalização na etapa (2) é conduzida sob condições solvotérmicas, preferencialmente sob condições hidrotérmicas.

18. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 17, em que a cristalização na etapa (2) envolve aquecimento da mistura por um período variando de 3 a 40h, preferencialmente de 5 a 30h, mais preferencialmente de 8 a 25h, mais preferencialmente de 10 a 21h, mais preferencialmente de 13 a 20h, e ainda mais preferencialmente de 15 a 20h.

19. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 18, em que a cristalização na etapa (2) envolve agitar a mistura, preferencialmente por mistura.

20. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 19 compreendendo adicionalmente uma ou mais das seguintes etapas de
isolar o material zeolítico, preferencialmente por filtração,e/ou
lavar o material zeolítico, e/ou
secar e/ou calcinar o material zeolítico, e/ou
submeter o material zeolítico a um procedimento de troca de íon,
em que as etapas (3) e/ou (4) e/ou (5) e/ou (6) podem ser
conduzidas em qualquer ordem, e
em que um ou mais de referidas etapas é preferencialmente
repetido uma ou mais vezes.

21. O processo da modalidade 20, em que na pelo menos uma etapa (6), um ou mais elementos iônicos não de treliça contidos na treliça de zeólito é submetido a troca de íon, preferencialmente contra um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos, em que o um ou mais cátion e/ou elementos catiônicos são preferencialmente selecionados a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Sr, Zr, Cr, Mg, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ru, Rh, Pd, Ag, Os, Ir, Pt, Au e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Sr, Cr, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em H⁺, NH₄⁺, Cr, Mg, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em Mg, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o um ou mais cátion e/ou elementos catiônicos compreendem Cu e/ou Fe, preferencialmente Cu, em que ainda mais preferencialmente o um ou mais cátion e/ou elementos catiônicos consistem em Cu e/ou Fe, preferencialmente em Cu,

e

em que o um ou mais elementos iônicos não de treliça preferencialmente compreendem H⁺ e/ou um metal alcalino, o metal alcalino preferencialmente sendo selecionado a partir do grupo consistindo em Li, Na, K, Cs e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em Li, Na, K e combinações de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o metal alcalino é Na e/ou K, ainda mais preferencialmente Na.

22. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 21, em que a mistura provida na etapa (1) não contém qualquer quantidade substancial de um compostos contendo trimetil benzil amônio, preferencialmente de um composto de trialquil benzil amônio em que preferencialmente a mistura provida na etapa (1) não contém qualquer quantidade substancial de um outro modelo orgânico além do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₅R₆R₇R₈N⁺ como agente de direcionamento de estrutura, em que mais preferencialmente a mistura provida na etapa (1) não contém qualquer quantidade substancial de um agente de outro direcionamento de estrutura além do um ou mais compostos contendo cátions de tetra-alquilamônio R₅R₆R₇R₈N⁺, e em que ainda mais preferencialmente, a mistura provida na etapa (1) contém apenas, preferencialmente, um ou mais compostos de N,N,N-trimetil-ciclohexilamônio e preferencialmente hidróxido de N,N,N-trimetil-ciclohexilamônio como agente de direcionamento de estrutura para a cristalização de um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA na etapa (2).

23. O processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 22, em que a mistura provida na etapa (1) comprehende adicionalmente germes cristalinos, preferencialmente germes cristalinos comprendendo um material zeolítico tendo a estrutura em treliça do tipo CHA, em que o material zeolítico

dos germes cristalinos é preferencialmente obtenível e/ou obtido de acordo com qualquer uma das modalidades de 1 a 22.

24. O processo da modalidade 23, em que a quantidade de germes cristalinos na mistura de acordo com a etapa (1) varia de 0,1 a 20% em peso com base em 100% em peso de YO_2 na pelo menos uma fonte para YO_2 , preferencialmente de 0,5 a 15% em peso, mais preferencialmente de 1 a 12% em peso, mais preferencialmente de 1,5 a 10% em peso, mais preferencialmente de 2 a 8% em peso, mais preferencialmente de 2,5 a 6% em peso, mais preferencialmente de 3 a 5% em peso, e ainda mais preferencialmente de 3,5 a 4,5 % em peso com base em 100% em peso de YO_2 .

25. Um material zeolítico sintético com uma estrutura em treliça do tipo CHA obtenível e/ou obtido de acordo com o processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 24.

26. Um material zeolítico sintético com uma estrutura em treliça do tipo CHA, preferencialmente obtenível ou obtido de aocrdo com o processo de qualquer uma das modalidades de 1 a 24, em que a estrutura em treliça do tipo CHA compreende YO_2 e X_2O_3 , em que Y é um elemento tetravalente e X é um elemento trivalente, e em que o espectro de IR do material zeolítico compreende:

uma primeira banda de absorção (B1) na faixa de 3,720 a 3,740 cm^{-1} ; e

a segunda banda de absorção (B2) na faixa de 1,850 to 1,890 cm^{-1} ; em que a razão da absorção máxima da primeira banda de absorção para a segunda banda de absorção B1:B2 é compreendida na faixa de 0,5 a 1,55, preferencialmente de 0,8 a 1,45, mais preferencialmente de 1,0 a 1,4, mais preferencialmente de 1,1 a 1,38, mais preferencialmente de 1,2 a 1,37, mais preferencialmente de 1,3 a 1,36, e mais preferencialmente de 1,33 a 1,35.

27. O material zeolítico da modalidade 26, em que o tamanho de partícula D10 do material zeolítico é compreendido na faixa de 500 a 2.500 nm,

preferencialmente de 600 a 2.000 nm, mais preferencialmente de 800 a 1.800 nm, mais preferencialmente de 1.000 a 1.600 nm, mais preferencialmente de 1.200 a 1.500 nm, e mais preferencialmente de 1.300 a 1.400 nm.

28. O material zeolítico da modalidade 26, em que o tamanho de partícula médio D50 do material zeolítico é compreendido na faixa de 700 a 3.500 nm, preferencialmente de 900 a 3.000 nm, mais preferencialmente de 1.100 a 2.800 nm, mais preferencialmente de 1.300 a 2.500 nm, mais preferencialmente de 1.500 a 2.200 nm, mais preferencialmente de 1.550 a 2.000 nm, mais preferencialmente de 1.600 a 1.900 nm, e mais preferencialmente de 1.650 a 1.850 nm.

29. O material zeolítico da modalidade 26, em que o tamanho de partícula D90 do material zeolítico é compreendido na faixa de 900 a 4.500 nm, preferencialmente de 1.100 a 4.000 nm, mais preferencialmente de 1.400 a 3.800 nm, mais preferencialmente de 1.600 a 3.500 nm, mais preferencialmente de 1.800 a 3.200 nm, mais preferencialmente de 2.000 a 2.900 nm, mais preferencialmente de 2.100 a 2.700 nm, mais preferencialmente de 2.200 a 2.600 nm, mais preferencialmente de 2.250 a 2.550 nm, e mais preferencialmente de 2.300 a 2.500 nm.

30. O material zeolítico da modalidade 26, em que o tamanho de partícula D10 do material zeolítico é compreendido na faixa de 1.200 a 1.500 nm, mais preferencialmente de 1.250 a 1.450 nm, e mais preferencialmente de 1.300 a 1.400 nm,

em que o tamanho de partícula médio D50 do material zeolítico é compreendido na faixa de 1.550 a 1.950 nm, preferencialmente de 1.600 a 1.900 nm, e mais preferencialmente de 1.650 a 1.850 nm, e

em que o tamanho de partícula D90 do material zeolítico é compreendido na faixa de 2.000 a 2.900 nm, preferencialmente de 2.100 a 2.700 nm, mais preferencialmente de 2.200 a 2.600 nm, mais preferencialmente de

2.250 a 2.550 nm, e mais preferencialmente de 2.300 a 2.500 nm.

31. O material zeolítico de qualquer uma das modalidades de 26 a 30, em que a treliça do tipo CHA não contém qualquer quantidade substancial dos elementos P e/ou As, preferencialmente um ou mais elementos selecionados a partir do grupo consistindo em P, As, V e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente um ou mais elementos selecionados a partir do grupo consistindo em P, As, Sb, Bi, V, Nb, Ta e combinações de dois ou mais dos mesmos, em que ainda mais preferencialmente referida estrutura de treliça não contém qualquer quantidade substancial de quaisquer elementos pentavalentes Z como elemento de treliça.

32. O material zeolítico de qualquer uma das modalidades de 26 a 31, em que o RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico compreende:

um primeiro pico (P1) na faixa de 55,0 a 61,5 ppm, preferencialmente de 56,0 a 60,5 ppm, mais preferencialmente de 56,5 a 60,0 ppm, mais preferencialmente de 57,0 a 59,5 ppm, mais preferencialmente de 57,5 a 59,0 ppm, mais preferencialmente de 57,8 a 58,7 ppm, mais preferencialmente de 58,0 a 58,5 ppm, e ainda mais preferencialmente de 58,1 a 58,3 ppm; e

um segundo pico (P2) na faixa de -0,0 a -7,0 ppm, preferencialmente de -0,5 a -6,0 ppm, mais preferencialmente de -1,0 a -5,5 ppm, mais preferencialmente de -1,5 a -5,0 ppm, mais preferencialmente de -2,0 a -4,5 ppm, mais preferencialmente de -2,3 a -4,1 ppm, mais preferencialmente de -2,5 a -3,8 ppm, mais preferencialmente de -2,7 a -3,6 ppm, e ainda mais preferencialmente de -2,8 a -3,4 ppm;

em que a integração do primeiro e do segundo pico no RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico oferece uma razão dos valores de integração P1:P2 compreendida na faixa de 1:(0,005 – 0,17), preferencialmente de 1:(0,01 – 0,16), mais preferencialmente de 1:(0,03 – 0,15), mais preferencialmente de 1:(0,05 –

0,145), mais preferencialmente de 1:(0,08 – 0,14), mais preferencialmente de 1:(0,10 – 0,135), mais preferencialmente de 1:(0,11 – 0,13) e ainda mais preferencialmente de 1:(0,115 – 0,125).

33. O material zeolítico de qualquer uma das modalidades de 26 a 32, em que o RMN de ^{29}Si MAS do material zeolítico compreende:

um primeiro pico (P'1) na faixa de -102,0 a -106,0 ppm, preferencialmente de -102,5 a -105,5 ppm, preferencialmente de -103,0 a -105,0 ppm, preferencialmente de -103,2 a -104,8 ppm, preferencialmente de -103,4 a -104,5 ppm, preferencialmente de -103,6 a -104,3 ppm, e ainda mais preferencialmente de -103,8 a -104,1 ppm; e

um segundo pico (P'2) na faixa de -108,0 a -112,5 ppm, preferencialmente de -109,0 a -111,5 ppm, preferencialmente de -109,5 a -111,0 ppm, preferencialmente de -110,0 a -110,5 ppm, e ainda mais preferencialmente de -110,2 a -110,3 ppm,

em que a integração do primeiro e do segundo pico no RMN de ^{29}Si MAS do material zeolítico oferece uma razão dos valores de integração P'1:P'2 compreendida na faixa de 0,05 a 0,90, preferencialmente de 0,10 a 0,70, mais preferencialmente de 0,15 a 0,60, mais preferencialmente de 0,20 a 0,50, mais preferencialmente de 0,25 a 0,45, mais preferencialmente de 0,30 a 0,40, mais preferencialmente de 0,32 a 0,38, e ainda mais preferencialmente de 0,34 a 0,36.

34. O material zeolítico de qualquer uma das modalidades de 26 a 33, em que a treliça do tipo CHA não contém qualquer quantidade substancial de P e/ou As, preferencialmente um ou mais elementos selecionados a partir do grupo consistindo em P, As, V e combinações de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente um ou mais elementos selecionados a partir do grupo consistindo em P, As, Sb, Bi, V, Nb, Ta e combinações de dois ou mais dos mesmos, em que ainda mais preferencialmente a estrutura de treliça não contém qualquer quantidade substancial de qualquer elemento pentavalentes Z como

elemento de treliça, e

em que o material zeolítico preferencialmente não compreende SSZ-13 e/ou SSZ-15.

35. O material zeolítico de acordo com qualquer uma das modalidades de 26 a 34, em que a razão molar de $\text{YO}_2:\text{X}_2\text{O}_3$ varia de 4 a 200, preferencialmente de 10 a 100, mais preferencialmente de 16 a 60, mais preferencialmente de 20 a 40, mais preferencialmente de 23 a 35 e ainda mais preferencialmente de 25 a 30.

36. O material zeolítico de qualquer uma das modalidades de 26 a 35, em que Y é selecionado a partir do grupo consistindo em Si, Sn, Ti, Zr, Ge e misturas de dois ou mais dos mesmos, Y preferencialmente sendo Si.

37. O material zeolítico de acordo com qualquer uma das modalidades de 26 a 36, em que X é selecionado a partir do grupo consistindo em Al, B, In, Ga e misturas de dois ou mais dos mesmos, X preferencialmente sendo Al e/ou B e mais preferencialmente sendo Al.

38. O material zeolítico de acordo com qualquer uma das modalidades de 26 a 37, em que o material zeolítico compreende um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos como elementos iônicos não de treliça, referido um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos preferencialmente compreendendo um ou mais selecionados a partir do grupo consistindo em H^+ , NH_4^+ , Sr, Zr, Cr, Mg, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ru, Rh, Pd, Ag, Os, Ir, Pt, Au e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em H^+ , NH_4^+ , Sr, Cr, Mo, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em H^+ , NH_4^+ , Cr, Mg, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, mais preferencialmente a partir do grupo consistindo em Mg, Mo, Fe, Ni, Cu, Zn, Ag e misturas de dois ou mais dos mesmos, em que mais preferencialmente o um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos compreendem Cu e/ou Fe,

preferencialmente Cu, em que ainda mais preferencialmente o um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos consistem em Cu e/ou Fe, preferencialmente em Cu.

39. O material zeolítico da modalidade 38, em que o um ou mais cátions e/ou elementos catiônicos são contidos no material zeolítico em uma quantidade variando de 0,01 a 25% em peso com base em 100% em peso de YO₂ compreendido no material zeolítico, preferencialmente de 0,05 a 15,0% em peso, mais preferencialmente de 0,1 a 10,0% em peso, mais preferencialmente de 0,5 a 6,0% em peso, mais preferencialmente de 1,0 a 4,0% em peso, mais preferencialmente de 1,5 a 3,5% em peso, mais preferencialmente de 2,0 a 3,0% em peso, mais preferencialmente de 2,3 a 2,7% em peso.

40. O material zeolítico de qualquer uma das modalidades de 26 a 39, em que a área de superfície BET do material zeolítico determinada de acordo com DIN 66135 varia de 100 a 850 m²/g, preferencialmente de 300 a 800 m²/g, mais preferencialmente de 400 a 750 m²/g, mais preferencialmente de 500 a 700 m²/g, mais preferencialmente de 550 a 650 m²/g, mais preferencialmente de 580 a 620 m²/g, mais preferencialmente de 590 a 610 m²/g.

41. Uso de um material zeolítico sintético com uma estrutura em treliça do tipo CHA de acordo com a modalidade 25 a 40, como uma peneira molecular, como um absorvente, para troca de íon, ou como um catalisador e/ou como um suporte de catalisador, preferencialmente como um catalisador para a redução catalítica seletiva (SCR) de óxidos de nitrogênio NO_x; para a oxidação de NH₃, em particular para a oxidação de deslize de NH₃ em sistemas a diesel; para a decomposição de N₂O; como um aditivo em processos (FCC) de craqueamento catalítico fluido; e/ou como um catalisador em reações de conversão orgânica, preferencialmente na conversão de álcoois para olefinas, e mais preferencialmente em catálise de metanol para olefina (MTO).

DESCRÍÇÃO DAS FIGURAS

[00140] Figuras 1 a 6 exibem os espectros de IR obtidos para o material cristalino obtido de acordo com os exemplos 2 e 3, e Exemplos Comparativos 1, 2, 3 e 4, respectivamente. Nas figuras, os números de onda em cm^{-1} são mostrados ao longo da abcissa, e a absorvência é plotada ao longo da ordenada.

[00141] Figura 7 exibe o padrão de difração de raio X (medido usando radiação Cu K-alfa-1) do produto de reação obtido de acordo com o Exemplo Comparativo 5. Para propósitos comparativos, o padrão de linha da estrutura do tipo CHA é indicado no difratograma do material amorfó como uma referência. Na figura, o ângulo 2 theta em ° é mostrado ao longo da abcissa e as intensidades são plotadas ao longo da ordenada.

[00142] Figura 8 exibe o padrão de difração de raio X (medido usando radiação Cu K-alfa-1) do produto de reação obtido de acordo com o Exemplo Comparativo 6. Em uma tentativa para identificar o produto de reação, os padrões de linha da estrutura de silicato de alumínio, sódio e hidrogênio ($\text{H}_{1,98}\text{Na}_{0,02}\text{Al}_2\text{Si}_{50}\text{O}_{104}$), da estrutura de quartzo, e da estrutura do tipo CHA são indicados no difratograma do material amorfó como uma referência. Na figura, o ângulo 2 theta em ° é mostrado ao longo da abcissa e as intensidades são plotadas ao longo da ordenada.

EXEMPLOS

[00143] Experimentos de difração de raios-X nos materiais em pó foram desempenhados usando um Difratômetro Advance D8 Series 2 (Bruker/AXS) equipado com um detector Sol-X usando a radiação Cu K-alfa-1.

[00144] Experimentos de RMN de ^{27}Al MAS de estado sólido foram medidos ao direcionar excitação com pulso de 15° sob Rotação em Ângulo Mágico de 10 kHz usando atraso de reciclo de 250 ms e aquisição em 20 ms. O dado foi processado com amplitude de linha exponencial de 50 Hz.

[00145] Experimentos de RMN de estado sólido de ^{29}Si MAS foram desempenhados usando um espectrômetro Bruker Avance com frequência Larmor de 300 MHz ^1H (Bruker Biospin, Alemanha). Os espectros foram processados usando Bruker Topspin com amplitude de linha exponencial de 30 Hz, faseamento manual e correção de linha de base manual ao longo da completa largura de espectro. Os espectros foram referidos com o polímero Q8M8 como um padrão secundário externo, ao definir a ressonância do grupo de trimetilsilil M para 12,5 ppm.

[00146] Os espectros de IR foram obtidos a partir de amostras livres de um material veículo, em que referidas amostras foram aquecidas em 300 °C em vácuo alto por 3 h antes da medição. As medições foram desempenhadas usando um espectrômetro Nicolet 6700 em uma célula de medição de vácuo alto com janelas de CaF₂. O dado obtido foi transformado para valores de absorvência, e a análise foi desempenhada no espectro após a correção de linha de base.

[00147] A distribuição de tamanho de partícula das amostras foi desempenhada ao dispersar 0,1 g do pó de zeólito em 100 g de H₂O e tratamento por ultrassom por 10 minutos. A dispersão de luz dinâmica foi desempenhada em um Zetasizer Nano ZS com o Software Malvern Zeta Sizer, Versão 6.34, aplicando 5 execuções em 10 segundos de tempo de medição para cada amostra. Os valores dados são o tamanho de partícula médio por número em nanômetro.

EXEMPLO 1: PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO TENDO A ESTRUTURA DE TRELIÇA DE CHA USANDO TRIMETILCICLOHEXILAMÔNIO E TETRAMETILAMÔNIO

[00148] 692,01 g de hidróxido de *N,N,N*-trimetilciclohexilamônio (20% em peso de solução em H₂O) foram misturados com 56,54 g de triisopropilato de alumínio e 150,62 g de hidróxido de tetrametilamônia (25% em peso de solução em H₂O). Mais tarde, 692,01 g de sílica coloidal (LUDOX AS

40; 40% em peso de solução coloidal em H₂O) e 11g de chabazita na medida em que germes cristalinos foram adicionados à mistura agitada. O gel resultante foi colocado em uma autoclave agitada com um volume total de 2,5 L. A autoclave foi aquecida dentro de 7h a 170 °C. A temperatura foi mantida constante por 30h. Depois, a autoclave foi arrefecida para temperatura ambiente. Então, os sólidos foram separados por filtração e lavagem intensiva com água destilada até a água de lavagem ter um pH de 7. Finalmente, o sólido foi secado por 10 horas em 120 °C para render 308 g de produto que foi então calcinado em 550 °C por 5h sob ar.

[00149] A caracterização do material por meio de XRD confirmou a estrutura em treliça do tipo CHA do produto e rendeu um tamanho de cristal médio de 117 nm e uma cristalinidade de 88%. O material exibiu uma área de superfície BET de 630 m²/g. A análise elementar antes da calcinação mostrou 36% em peso de Si, 2,2% em peso de Al, 11,8% em peso de C, 1,6% em peso de N e 0,07% em peso de Na na amostra, assim, rendendo uma razão atômica de SiO₂:Al₂O₃ (SAR) de 31.

[00150] A distribuição de tamanho de partícula da amostra calcinada rendeu um valor de D10 de 1,4 µm, um valor de D50 de 1,89 µm, e um valor de D90 de 2,58 µm.

[00151] O RMN de ²⁹Si MAS do material zeolítico exibe picos em -103,8 e -110,2 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 0,397 e 1 para os sinais, respectivamente.

[00152] O RMN de ²⁷Al MAS do material zeolítico exibe picos em 58,3 e -0,7 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 1 e 0,112 para os sinais, respectivamente.

EXEMPLO 2: PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO TENDO A ESTRUTURA DE TRELIÇA DE CHA USANDO TRIMETILCICLOHEXILAMÔNIO E TETRAMETILAMÔNIO

[00153] 534,54 g de hidróxido de *N,N,N*-trimetilciclohexilamônio

(20% em peso de solução em H₂O) foram misturados com 56,54 g de triisopropilato de alumínio e 150,62 g de hidróxido de tetrametilamônia (25 % em peso de solução em H₂O). Posteriormente, 692,01 g de sílica coloidal (LUDOX AS 40; 40% em peso de solução coloidal em H₂O) e 11g de chabazita como germes cristalinos foram adicionados à mistura agitada. O gel resultante foi colocado em uma autoclave agitada com um volume total de 2,5 L. A autoclave foi aquecida dentro de 7h a 170 °C. A temperatura foi mantida constante por 30 h. Depois, a autoclave foi arrefecida para a temperatura ambiente. Então, os sólidos foram separados por filtração e lavagem intensiva com água destilada até a água de lavagem ter um pH de 7. Finalmente, o sólido foi seco por 10 horas em 120°C para render 327 g de produto foi então calcinado em 550 °C por 5h para render 296 g de um pó branco.

[00154] A caracterização do material por meio de XRD confirmou a estrutura em treliça do tipo CHA do produto e rendeu um tamanho de cristal médio de 117 nm e uma cristalinidade de 92%. O material exibiu uma área de superfície BET de 613 m²/g, um volume de poro de 1,07 cm³/g e uma largura de poro mediano de 0,68 nm. A análise elementar antes da calcinação mostrou 36% em peso de Si, 2,9% em peso de Al, 12,9% em peso de C, 1,6% em peso de N e 0,13% em peso de Na na amostra, assim, rendendo uma razão atômica (SAR) de SiO₂:Al₂O₃ de 25.

[00155] O espectro de IR da amostra calcinada é mostrada na Figura 1, em que entre outras bandas de absorção tendo máxima em 3,732 cm⁻¹ e 1,866 cm⁻¹ podem ser vistas, que exibem uma razão de absorção máxima do primeiro para o último de 1,33.

[00156] A distribuição de tamanho de partícula da amostra calcinada rendeu um valor de D10 de 1,3 µm, um valor de D50 de 1,69 µm, e um valor de D90 de 2,25 µm.

[00157] O RMN de ²⁹Si MAS do material zeolítico exibe picos em -

104,1 e -110,3 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 0,334 e 1 para os sinais, respectivamente.

[00158] O RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico exibe picos em 58,3 e -6,3 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 1 e 0,124 para os sinais, respectivamente.

EXEMPLO 3: PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO TENDO A ESTRUTURA DE TRELIÇA DE CHA USANDO TRIMETILCICLOHEXILAMÔNIO E TETRAMETILAMÔNIO

[00159] 276,8 kg de hidróxido de N,N,N -trimetilciclohexilamônio (20% em peso de solução em H_2O) foram misturados com 34,80 kg de triisopropilato de alumínio e 77,99 kg de hidróxido de tetrametilamônia (25% em peso de solução em H_2O). Depois, 358,32 kg de sílica coloidal (LUDOX AS 40; 40% em peso solução coloidal em H_2O) e 5,73 kg de sementes de CHA foram adicionados à mistura agitada. O gel resultante foi colocado em uma autoclave agitada com um volume total de 1600 L. A autoclave foi aquecida dentro de 7h a 170 °C. A temperatura foi mantida constante por 18h. Depois, a autoclave foi arrefecida para temperatura ambiente. Então, os sólidos foram separados por filtração e intensivamente lavados até a água de lavagem ter um pH de 7. Finalmente, o sólido foi seco por 10 horas em 120 °C. O material foi, então, calcinado em 550 °C por 5 horas.

[00160] A caracterização do material por meio de XRD confirmou a estrutura em treliça do tipo CHA do produto e rendeu um tamanho de cristal médio de 118 nm e uma cristalinidade de 92%. O material exibiu uma área de superfície BET de 654 m^2/g , um volume de poro de 1,09 cm^3/g e uma largura de poro mediano de 0,68 nm. A análise elementar antes da calcinação mostrou 37% em peso de Si, 2,8% em peso de Al, 12,1% em peso de C, 1,6% em peso de N e 0,11% em peso de Na na amostra, assim, rendendo uma razão atômica (SAR) de $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ de 25.

[00161] O espectro de IR da amostra calcinada é mostrado na

Figura 2, em que, entre outras, bandas de absorção com máxima em 3,733 cm⁻¹ e 1,866 cm⁻¹ podem ser vistas, que exibem uma razão de absorção máxima do primeiro para o último de 1,35.

[00162] A distribuição de tamanho de partícula da amostra calcinada rendeu um valor de D10 de 0,40 µm, um valor de D50 de 0,58 µm e um valor de D90 de 0,89 µm.

[00163] O RMN de ²⁹Si MAS do material zeolítico exibe picos em -104,2 e -110,5 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 0,394 e 1 para os sinais, respectivamente.

[00164] O RMN de ²⁷Al MAS do material zeolítico exibe picos em 58,5 e -2,7 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 1 e 0,225 para os sinais, respectivamente.

EXEMPLO COMPARATIVO 1: PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO COM A ESTRUTURA DE TRELIÇA DE CHA USANDO ADAMANTIOTRIMETILAMÔNIO E TETRAMETILAMÔNIO

[00165] 554,6 g de hidróxido de 1-adamantiotrimetilamônio (20,44% em peso de solução em H₂O) foram misturados com 101,9 g de triisopropilato de alumínio e 210,9 g de hidróxido de tetrametilamônia (25% em peso de solução em H₂O). Depois, 1036,2 g de sílica coloidal (LUDOX AS 40; 40% em peso solução coloidal em H₂O) e 20,7 g de chabazita como germes cristalinos foram adicionados juntamente com 96,4 de H₂O destilada à mistura agitada. O gel resultante foi colocado em uma autoclave agitada com um volume total de 2,5 L. A autoclave foi aquecida dentro de 7 h a 170 °C. A temperatura foi mantida constante por 16 h. Depois, a autoclave foi arrefecida para temperatura ambiente. Então, os sólidos foram separados por filtração e lavagem intensiva com água destilada até a água de lavagem ter um pH de 7. Finalmente, o sólido foi seco por 10 horas em 120 °C para render 327 g de um produto sólido que foi então calcinado em 600 °C por 5h para render 296 g de um pó branco.

[00166] A caracterização do material por meio de XRD confirmou a estrutura em treliça do tipo CHA do produto e rendeu um tamanho de cristal médio de 119 nm e uma cristalinidade de 90%. O material exibiu uma área de superfície BET de 644 m²/g, um volume de poro de 0,72 cm³/g e uma largura de poro mediano de 0,18 nm. A análise elementar do material calcinado mostrou 42% em peso de Si, 3,1% em peso de Al e 0,15% em peso de Na na amostra, assim, rendendo uma razão atômica (SAR) de SiO₂:Al₂O₃ de 26.

[00167] O espectro de IR da amostra calcinada é mostrado na Figura 3, em que, entre outras, bandas de absorção tendo máxima em 3,732 cm⁻¹ e 1,869 cm⁻¹ podem ser vistas, o que exibe uma razão de absorção máxima do primeiro ao último de 1,72.

[00168] A distribuição de tamanho de partícula da amostra calcinada rendeu um valor de D10 de 0,311 µm, um valor de D50 de 0,476 µm e um valor de D90 de 0,766 µm.

[00169] O RMN de ²⁹Si MAS do material zeolítico exibe picos em -104,3 e -110,3 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 0,311 e 1 para os sinais, respectivamente.

[00170] O RMN de ²⁷Al MAS do material zeolítico exibe picos em 58,6 e -0,8 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 1 e 0,1752 para os sinais, respectivamente.

EXEMPLO COMPARATIVO 2: PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO COM A ESTRUTURA DE TRELIÇA DE CHA USANDO ADAMANTIOTRIMETILAMÔNIO E

TETRAMETILAMÔNIO

[00171] 536,6 g de hidróxido de 1-adamantiotrimetilamônio (21,39% em peso de solução em H₂O) foram misturados com 103,9 g de aluminiotriisopropilato e 213,6 g de hidróxido de tetrametilâmnia (25% em peso de solução em H₂O). Depois, 1049,1 g de sílica coloidal (LUDOX AS 40; 40% em peso de solução coloidal em H₂O) e 21,0 g de chabazita como germes cristalinos

foram adicionados juntos com 97,6 g de H₂O destilada à mistura agitada. O gel resultante foi colocado em uma autoclave agitada com um volume total de 2,5 L. A autoclave foi aquecida dentro de 8 h para 170 °C. A temperatura foi mantida constante por 24 h. Depois, a autoclave foi arrefecida para temperatura ambiente. Então, os sólidos foram separados por filtração e lavagem intensiva com água destilada até a água de lavagem ter um pH de 7. Finalmente, o sólido foi seco por 10 horas em 120 °C e então calcinado 600 °C por 5 h, assim, rendendo 457 g de um pó branco.

[00172] A caracterização do material por meio de XRD confirmou a estrutura em treliça do tipo CHA do produto e rendeu um tamanho de cristal médio de 111 nm e uma cristalinidade de 92%. O material exibiu uma área de superfície BET de 635 m²/g, um volume de poro de 1,13 cm³/g e uma largura de poro mediano de 0,49 nm. A análise elementar do material calcinado mostrou 41% em peso de Si, 3,1% em peso de Al e 0,11% em peso de Na na amostra, assim, rendendo uma razão atômica de SiO₂:Al₂O₃ (SAR) de 26.

[00173] O espectro de IR da amostra calcinada é mostrado na Figura 4, em que, entre outras, bandas de absorção tendo máxima em 3,733 cm⁻¹ e 1,871 cm⁻¹ podem ser vistas, que exibem uma razão de absorção máxima do primeiro para o último de 1,59.

[00174] A distribuição do tamanho de partícula da amostra calcinada rendeu um valor de D10 de 0,257 µm, um valor de D50 de 0,578 µm e um valor de D90 de 1,1 µm.

[00175] O RMN de ²⁹Si MAS do material zeolítico exibe picos em -104,6 e -110,6 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 0,288 e 1 para os sinais, respectivamente.

[00176] O RMN de ²⁷Al MAS do material zeolítico exibe picos em 58,7 e -3,5 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 1 e 0,267 para os sinais, respectivamente.

EXEMPLO COMPARATIVO 3: PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO COM A**ESTRUTURA DE TRELIÇA DE CHA USANDO TRIMETILCICLOHEXILAMÔNIO**

[00177] 291,3 g de hidróxido de trimetilciclohexilamônio (35,0% em peso em H₂O) são misturados com 42,88 g de Al₂(SO₄)₃*18 H₂O e 160,84ml de 1 M de NaOH aquoso. Depois, 482,62 g de sílica coloidal (LUDOX AS 40; 40% de SiO₂ coloidal em peso em H₂O) são adicionados à mistura agitada. Finalmente, 3,83 g de Na-chabazita (com uma razão de sílica para alumina de 30) como germes cristalinos são dispersados na mistura de reação. O gel resultante é colocado em uma autoclave vedada com um volume total de 2,5 L que é, então, aquecida para 170 °C por 48h. Após arrefecimento para temperatura ambiente, o sódio obtido contendo um zeólito tendo a estrutura de treliça de CHA é separado por filtração e é lavado com 2000 ml de H₂O destilada três vezes. Após, o material é seco por 10h sob ar em 120 °C, resultando em 245,5 g de pó branco. O produto foi então calcinado sob ar com uma taxa de aquecimento de 1K/min para 550 °C por 5h.

[00178] A caracterização do material por meio de XRD confirmou a estrutura em treliça do tipo CHA do produto e rendeu um tamanho de cristal médio de 150 nm e uma cristalinidade de 92%. O material exibiu uma área de superfície BET de 627 m²/g. A análise elementar do material calcinado mostrou 37,5% em peso de Si, 1,6% em peso de Al e 0,1% em peso de Na na amostra, assim, rendendo uma razão atômica (SAR) de SiO₂:Al₂O₃ de 45.

[00179] O espectro de IR da amostra calcinada é mostrado na Figura 5, em que, entre outras, bandas de absorção tendo máxima e 3,729 cm⁻¹ e 1,872 cm⁻¹ podem ser vistas, que exibem uma razão de absorção máxima do último para o primeiro de 1,46.

[00180] A distribuição do tamanho de partícula da amostra calcinada rendeu um valor de D10 de 0,49 µm, um valor de D50 de 0,637 µm e um valor de D90 de 0,839 µm.

[00181] O RMN de ^{29}Si MAS do material zeolítico exibe picos em -103,8 e -110,4 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 0,266 e 1 para os sinais, respectivamente.

[00182] O RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico exibe picos em 57,5 e -0,0 ppm, em que a integração dos picos oferece intensidades relativas de 1 e 0,005 para os sinais, respectivamente.

EXEMPLO COMPARATIVO 4: PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO TENDO A ESTRUTURA DE TRELIÇA DE CHA USANDO ADAMANTIOTRIMETILAMÔNIO

[00183] 174,6 g de H_2O foram agitados juntamente com 478,8 g de uma solução de hidróxido de adamantiotrimetilamônio de 20% em peso em H_2O . 102,7 g de NaOH (25% em peso em H_2O) foram adicionados devagar sob agitação. Após 10 minutos 80,4 g de triisopropilato de alumínio foram dissolvidos na mistura de reação seguida pela adição de 963,4 g de sílica coloidal (LUDOX AS 40; SiO_2 coloidal em 40% em peso em H_2O) após 60 minutos. Finalmente, a mistura de reação é agitada por 30 min antes de ser colocada em uma autoclave, que é aquecida para 170 °C por 20 horas. Após a autoclave ser arrefecida para temperatura ambiente, a dispersão resultante foi ajustada por meio de uma solução de HNO_3 de 10% em peso em H_2O para um valor de pH de 7. Após, para o sólido resultante ter sido filtrado e lavado com H_2O destilada até uma condutividade de menos que 200 μS ser atingida. Após, o sólido foi aquecido em 120 °C por 10h e, então, calcinado sob ar em 600 °C por 6h para render 391g de um pó branco.

[00184] A caracterização do material por meio de XRD confirmou a estrutura em treliça do tipo CHA do produto e rendeu um tamanho de cristal médio de 55 nm e uma cristalinidade de 88%. O material exibiu uma área de superfície BET de 615 m^2/g , um volume de poro de 1,59 cm^3/g e uma largura de poro mediano de 0,88 nm. A análise elementar do material calcinado mostrou 40,5% em peso de Si, 3,1% em peso de Al e 0,62% em peso de Na na amostra,

assim, rendendo uma razão atômica (SAR) de $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3$ de 31.

[00185] O espectro de IR da amostra calcinada é mostrado na Figura 6, em que, entre outras, bandas de absorção tendo máxima em $3,733 \text{ cm}^{-1}$ e $1,870 \text{ cm}^{-1}$ podem ser vistas, que exibem uma razão de absorção máxima do primeiro para o último de 2,43.

[00186] A distribuição de tamanho de partícula da amostra calcinada rendeu um valor de D10 de 34 nm, um valor de D50 de $0,28 \mu\text{m}$ e um valor de D90 de $1,54 \mu\text{m}$.

[00187] O RMN de ^{29}Si MAS do material zeolítico exibe picos em -104,0 e -110,5 ppm. O RMN de ^{27}Al MAS do material zeolítico exibe um pico em 58,1.

EXEMPLO COMPARATIVO 5: PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO TENDO A ESTRUTURA DE TRELIÇA DE CHA USANDO BAIXAS QUANTIDADES DE TRIMETILCICLOHEXILAMÔNIO EM COMBINAÇÃO COM TETRAMETILAMÔNIO

[00188] Exemplo 1 de WO 2011/064186 A1 foi repetido com a exceção de que hidróxido de trimetil-1-adamantilamônio foi substituído por trimetilciclohexilamônio. Mais especificamente, 267,0 g de N,N,N -hidróxido de trimetilciclohexilamônio (20% em peso de solução em H_2O) foram misturados com 62,03 g de triisopropilato de alumínio e 154,92 g de hidróxido de tetrametilamônio (25% em peso de solução em H_2O). Após, 692,01 g de LUDOX AS 40 (40% em peso de solução coloidal em H_2O) foram adicionados junto com 210 ml de H_2O à mistura agitada. O gel resultante foi colocado em uma autoclave agitada com um volume total de 2,5 L. A autoclave foi aquecida dentro de 7h a 170 °C. A temperatura foi mantida constante por 48h. Posteriormente, a autoclave foi arrefecida para temperatura ambiente. Então, o sólido foi separado por filtração e lavado intensivamente com H_2O até a água de lavagem ter um pH de 7. Finalmente, o sólido foi seco por 10 horas em 120 °C.

[00189] A caracterização do produto resultante por meio de XRD é

exibida na Figura 7 e revelou um material amorfó. Para propósitos comparativos, o padrão de linha da estrutura do tipo CHA é indicado no difratograma do material amorfó como uma referéncia.

[00190] Consequentemente, conduzir o procedimento de WO 2011/064186 A1 usando o modelo de trimetilciclohexilamônio ao invés do modelo de *N,N*-trimetilciclohexilamônio ensinado por meio desse documento, na medida em que o agente de direcionamento de estrutura não rende um material zeolítico tendo a treliça do tipo CHA de acordo com a presente invenção, mas ao invés disso, não permite a produção de qualquer material zeolítico whatsoever.

EXEMPLO COMPARATIVO 6: PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO CONTENDO BORO COM A ESTRUTURA DE TRELIÇA DE CHA USANDO BAIXAS QUANTIDADES DE TRIMETILCICLOHEXILAMÔNIO EM COMBINAÇÃO COM TETRAMETILAMÔNIO

[00191] Exemplo 1 de EP 2325143 A2 foi repetido com a exceção de que hidróxido de trimetil-1-adamantilamônio foi substituído por trimetilciclohexilamônio. Mais especificamente, 577,9 g de hidróxido de *N,N,N*-ciclohexiltrimetilamônio (13,3% em peso em H₂O), 203,8 hidróxido de tetrametilamônio (25% em peso de solução em H₂O) e 163,4 ml de H₂O (DI) foram agitados em uma proveta por 10 minutos. Após, 31 g de ácido bórico (pureza de 99,6%) foram adicionados. A mistura resultante foi agitada por outros 60 minutos. 999,6 g de uma suspensão aquosa de sílica coloidal (LUDOX AS 40) foram dadas na mistura de reação seguida por outro período de agitação de 20 minutos antes de 20 g de germes cristalinos B-CHA preparados em conformidade com Exemplo A de EP 2325143 A2 foram dispersos. Finalmente, a dispersão, foi transferida para dentro de uma autoclave. A cristalização foi conduzida em 160 °C por 72h com uma taxa de agitação de 200 rpm.

[00192] O material sólido obtido foi separado do licor-mãe por filtração. Após, o bolo de filtro obtido foi seco em 120 °C por 240 minutos sob ar (taxa de aquecimento dentro de 30 minutos a 120 °C). A partir do pó branco

resultante, um difratograma de raio X foi conduzido.

[00193] A caracterização do produto resultante por meio de XRD é exibida na Figura 8. Uma análise do padrão usando um banco de dados de padrões de linha XRD revelou que o produto consiste em uma mistura de numerosos compostos cristalinos, nem todos dos quais puderam ser identificados e apenas uma porção dos mesmos, mesmo potencialmente exibindo um padrão de difração típico para a estrutura do tipo CHA.

[00194] Consequentemente, também quando conduzindo o procedimento de EP 2325143 A2, usando o modelo de trimetilciclohexilamônio ao invés do modelo de *N,N*-trimetilciclohexilamônio, ensinado nele, como agente de direcionamento de estrutura, não um material zeolítico puro tendo a treliça do tipo CHA de acordo com a presente invenção, mas ao invés disso leva a uma mistura complexa de produtos dos quais apenas uma porção menor pode exibir a estrutura em treliça do tipo CHA. Em particular, referida mistura deve conter um material zeolítico tendo a estrutura CHA e não deve ser apenas produzida em um baixo rendimento, mas, além disso, – se possível em todo – exige um procedimento de purificação extenso para seu isolamento.

EXEMPLO 4: TESTE DE CATALISADOR DE SCR

[00195] Para teste de catalisador, as amostras obtidas nos exemplos e exemplos comparativos foram subsequentemente submetidos a troca de íon com amônia e cobre para obter um material zeolítico com a estrutura em treliça do tipo CHA com uma carga de cobre na faixa de 2,2 a 2,9% em peso com base no peso total do zeólito trocado. As amostras foram, então, extrudadas com óxido de polietileno e H₂O, e os extrudados foram calcinados por 5h em 540 °C sob ar. Posteriormente, os sólidos foram peneirados para um tamanho de 0,5-1 mm. A fração de divisão obtida foi envelhecida por 6h em 850 °C sob ar com 10% em volume de H₂O. Testes de SCR nos pós extrudados foram desempenhados em 200, 300 e 450 °C, respectivamente, usando uma corrente

de gás com 500 ppm de NO, 500 ppm de NH₃, 5% de H₂O, 10% de O₂, balanço de N₂, usando uma velocidade espacial horária de gás GHSV de 80.000 h⁻¹.

[00196] Em adição ao teste catalítico desempenhado em no pó (“Teste de Pó”), as amostras submetidas a troca de íon foram adicionalmente revestidas com monólitos (“Teste de Núcleo”) em uma carga de cobertura de lavagem de 2,1 g/in³. As amostras cobertas laváveis foram, então, envelhecidas em 750 °C por 5h em ar com 10% de H₂O. Os testes de SCR nas amostras cobertas laváveis foram desempenhados em 200 e 600 °C, respectivamente, usando uma corrente de gás com 500 ppm de NO, 500 ppm de NH₃, 5% de H₂O, 10% de O₂ (como ar), balanço de N₂, usando uma velocidade espacial horária de gás de GHSV de 80.000 h⁻¹. Os resultados do teste das amostras de pó e revestimento lavável são exibidos na Tabela 1.

TABELA 1: RESULTADOS DE TESTE DE SCR.

		Ex. 1	Ex. 2	Ex.3			EX. Co mp. 1	Ex. Com p.2	Ex. Com p.3	Ex. Com p.4
	Cu [% em peso]	2,3	2,5	2,2	2,7	2,9	2,5	2,3	2,5	2,3
Teste em Pó	Conversão de NO _x [%] em 200 °C	71	75	85	n.a	n.a	77	67	82	75
	Conversão de NO _x [%] em 300 °C	80	84	89	n.a	n.a	82	69	96	84
	Conversão de NO _x [%] em 450 °C	78	80	85	n.a	n.a	76	69	77	74

		Ex. 1	Ex. 2	Ex.3			EX. Co mp. 1	Ex. Com p.2	Ex. Com p.3	Ex. Com p. 4
Teste de Núcle o	Conversão de NO _x [%] em 200 °C	<i>n.a.</i> -	67	65	73	75	<i>n.a.</i>	71	64	62
	Conversão de NO _x [%] em 600 °C	<i>n.a.</i> -	83	88	76	77	<i>n.a.</i>	78	65	67

[00197] Assim, como pode ser observado a partir da Tabela 1, os resultados obtidos usando os exemplos inventivos mostram claramente que o material zeolítico obtido de acordo com os exemplos inventivos, cuja síntese que emprega uma combinação específica de um cátion de tetra-alquilamônio e um cátion de cicloalquilamônio exibe um desempenho aprimorado em catálise de SCR, em particular em temperaturas mais altas. Isso é particularmente aparente quando comparando os resultados obtidos no “Teste de Núcleo” que foram desempenhados em monólitos revestidos, como usado tipicamente na técnica para o abatimento de emissões de NO_x, tal como no tratamento de gás de exaustão catalítico. Assim, embora os catalisadores inventivos com cargas de cobre similares ou idênticas exibam taxas de conversão comparáveis em baixas temperaturas, referida conversão aumenta para uma extensão alta mediante elevação da temperatura para ultrapassar claramente os catalisadores obtidos de acordo com os exemplos comparativos em 600 °C. O efeito observado pelos catalisadores inventivos é importante, em vista do fato de que embora um certo aprimoramento na conversão de NO_x possa ser observado por Exemplos

Comparativos 1 e 2 que também são obtidos usando um cátion de tetra-alquilamônio, no entanto, em combinação com um agente de direcionamento de estrutura bem conhecido na técnica, referido aumento em atividade é claramente inferior para o aumento na atividade observada para os catalisadores inventivos de acordo com os Exemplos 2 e 3. O mesmo se aplica, consequentemente, quando comparando referido aumento considerável em atividade com os resultados obtidos para os materiais obtidos sem um cátion de tetra-alquilamônio em adição ao agente de direcionamento de estrutura nos Exemplos Comparativos 3 e 4. Consequentemente, foi claramente demonstrado pelo teste comparativo elaborado desempenhado para a presente aplicação que as propriedades inesperadas dos materiais inventivos e, em particular, seu desempenho catalítico considerável em SCR é o resultado de um efeito sinérgico observado para uma combinação altamente específica de um agente de direcionamento de estrutura particular com um cátion de tetra-alquilamônio, o que pode não ser atingido por um agente de direcionamento de estrutura particular sozinho, nem por uma combinação de um agente de direcionamento de estrutura diferente daquela usada no processo inventivo com um cátion de tetra-alquilamônio.

[00198] Consequentemente, o material zeolítico com uma treliça do tipo CHA provido pela presente invenção se distingue claramente dos materiais zeolíticos como pode, por exemplo, ser obtido de acordo com a técnica não apenas em vista de suas características físicas únicas, mas ainda devido às suas propriedades químicas altamente consideráveis em particular na conversão de NO_x por redução catalítica seletiva, tal como fazê-los candidatos particularmente promissores para catalisadores de SCR altamente eficientes. Isso também se aplica em vista de sua produção altamente rentável possível pelo procedimento sintético particularmente rápido da presente invenção empregando agentes de direcionamento de estruturas baratos.

REIVINDICAÇÕES

1. PROCESSO PARA PREPARAÇÃO DE UM MATERIAL ZEOLÍTICO, com uma estrutura em treliça do tipo CHA compreendendo SiO₂ e Al₂O₃, caracterizado pelo dito processo compreender as etapas de:

(1) prover uma mistura compreendendo uma ou mais fontes para SiO₂, uma ou mais fontes para Al₂O₃, um ou mais compostos de tetrametilamônio, e um ou mais compostos de *N,N,N*-trimetil-ciclohexilamônio como agente de direcionamento de estrutura;

(2) cristalizar a mistura obtida na etapa (1) a fim de obter um material zeolítico com uma estrutura em treliça do tipo CHA;

em que a razão molar de compostos de tetrametilamônio para compostos de *N,N,N*-trimetil-ciclohexilamônio é compreendida na faixa de 0,45 a 0,65.

2. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pela cristalização na etapa (2) ser conduzida sob condições solvotérmicas.

3. PROCESSO, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 2, caracterizado pelo fato mistura provida na etapa (1) não conter qualquer quantidade substancial de um composto contendo trimetil benzil amônio.

4. PROCESSO, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 3, caracterizado pela mistura provida na etapa (1) compreender adicionalmente germes cristalinos.

5. MATERIAL ZEOLÍTICO SINTÉTICO, com uma estrutura de treliça do tipo CHA, caracterizado por ser obtêivel e/ou obtido pelo processo, conforme definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 4.

6. MATERIAL, de acordo com a reivindicação 5, caracterizado pelo espectro de IR do material zeolítico compreender:

uma primeira banda de absorção (B1) na faixa de 3.720 a 3.740 cm⁻¹; e

uma segunda banda de absorção (B2) na faixa de 1.850 a 1.890 cm⁻¹;

em que a razão da absorvência máxima da primeira banda de absorção para a segunda banda de absorção B1:B2 é compreendida na faixa de 0,5 a 1,55.

7. MATERIAL, de acordo com a reivindicação 6, caracterizado pelo tamanho de partícula D10 do material zeolítico ser compreendido na faixa de 400 a 2500 nm.

8. MATERIAL, de acordo com a reivindicação 6, caracterizado pelo tamanho de partícula médio D50 do material zeolítico ser compreendido na faixa de 600 a 3500 nm.

9. MATERIAL, de acordo com a reivindicação 6, caracterizado pelo tamanho de partícula D90 do material zeolítico estar compreendido na faixa de 1200 a 4500 nm.

10. MATERIAL, de acordo com qualquer uma das reivindicações 6 a 9, caracterizado pela treliça do tipo CHA conter 5% em peso ou menos dos elementos P e/ou As com base em 100% em peso de SiO₂ contido na estrutura de treliça.

11. MATERIAL, de acordo com qualquer uma das reivindicações 6 a 10, caracterizado pelo RMN de ²⁹Si MAS do material zeolítico compreender:

um primeiro pico (P'1) na faixa de -102,0 a -106,0 ppm; e

um segundo pico (P'2) na faixa de -108,0 a -112,5 ppm,

em que a integração do primeiro e do segundo pico no RMN de ²⁹Si MAS do material zeolítico oferece uma razão dos valores de integração P'1:P'2 compreendidos na faixa de 0,05 a 0,90.

12. MATERIAL, de acordo com qualquer uma das reivindicações

6 a 11, caracterizado pelas razões molares de SiO₂:Al₂O₃ variarem de 4 a 200.

13. USO DE MATERIAL ZEOLÍTICO SINTÉTICO, com uma estrutura de treliça do tipo CHA, conforme definido em qualquer uma das reivindicações 5 a 12, caracterizado por ser como uma peneira molecular, como um absorvente, para troca de íon ou como um catalisador e/ou como um suporte de catalisador.

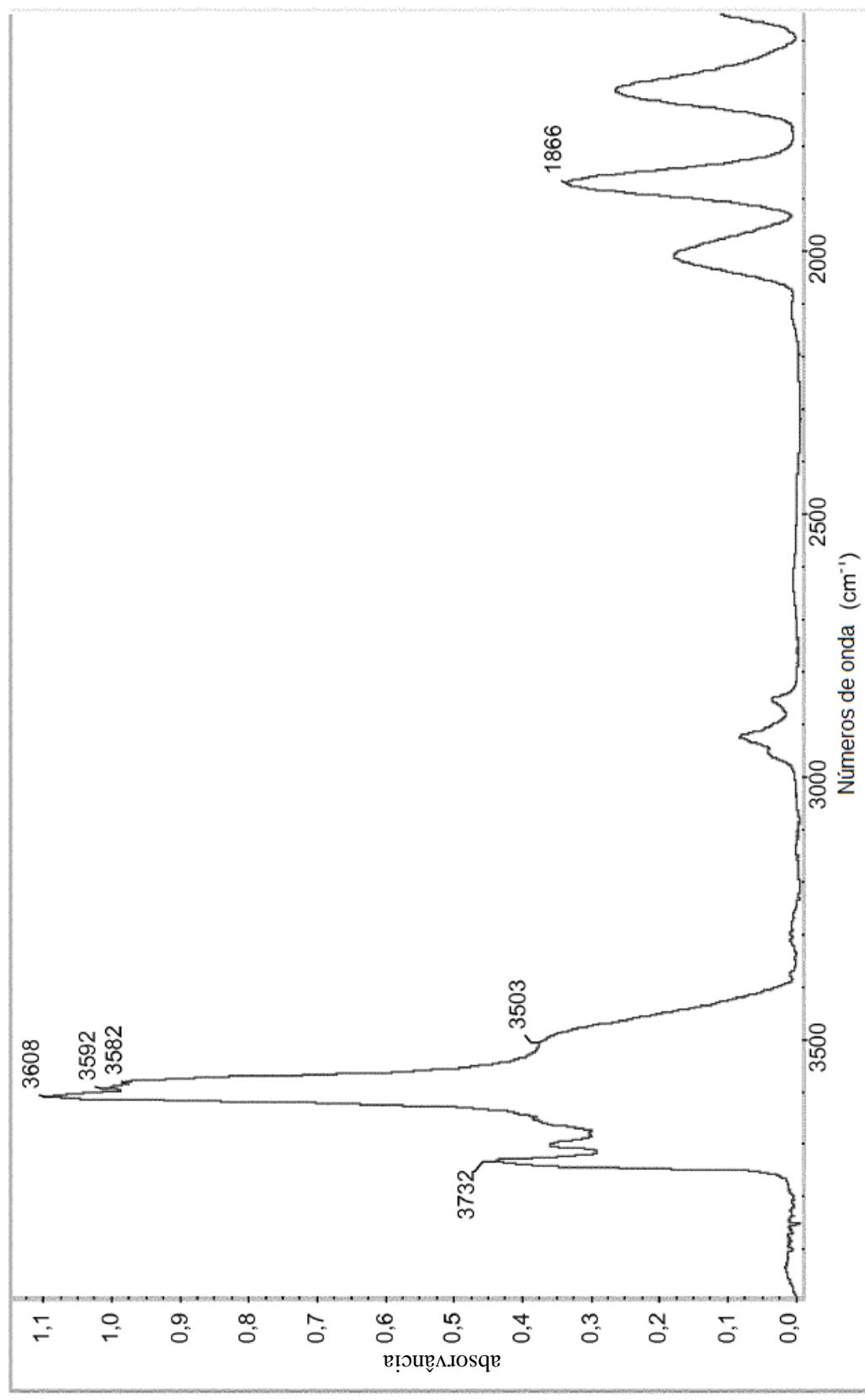
Figura 1

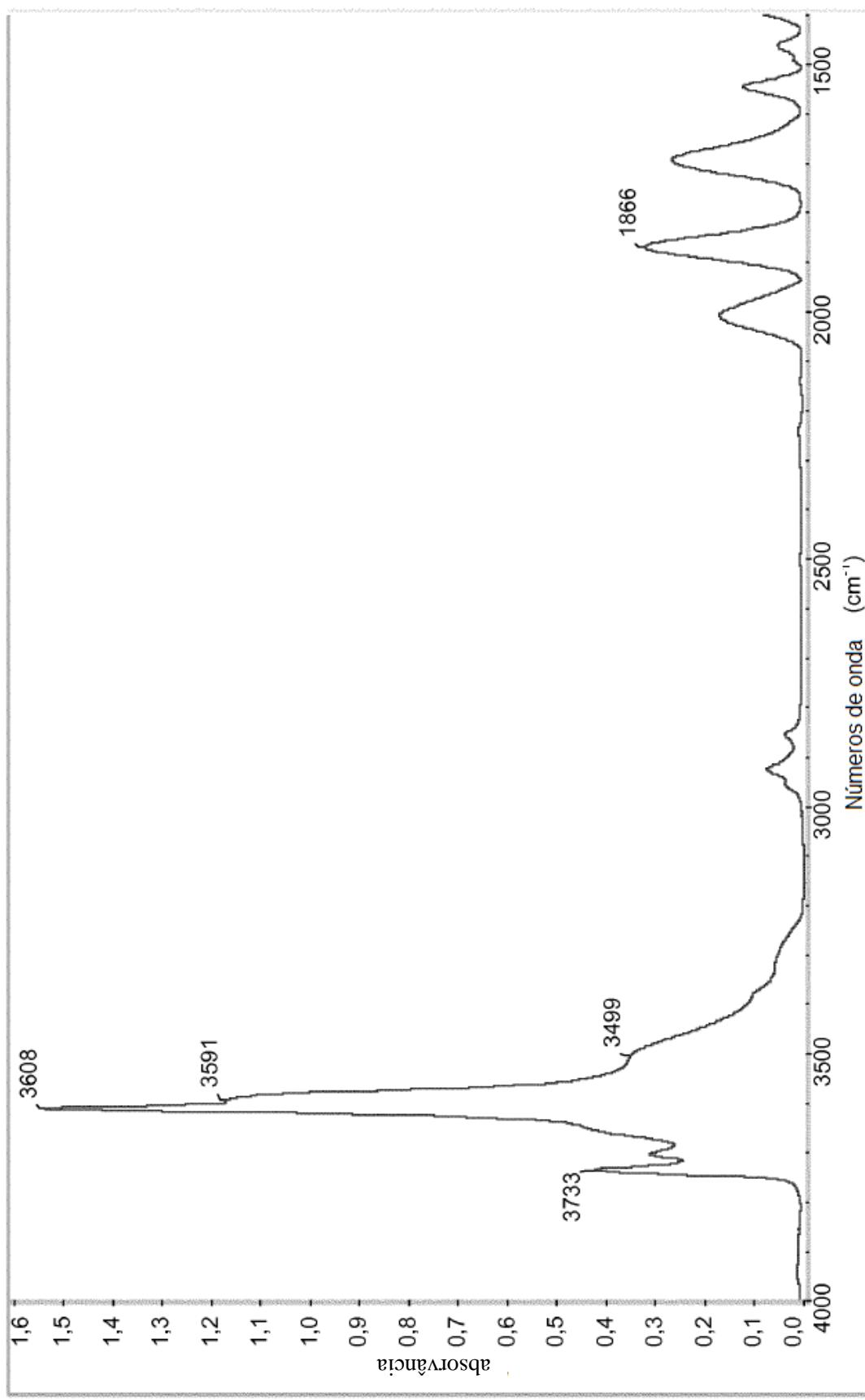
Figura 2

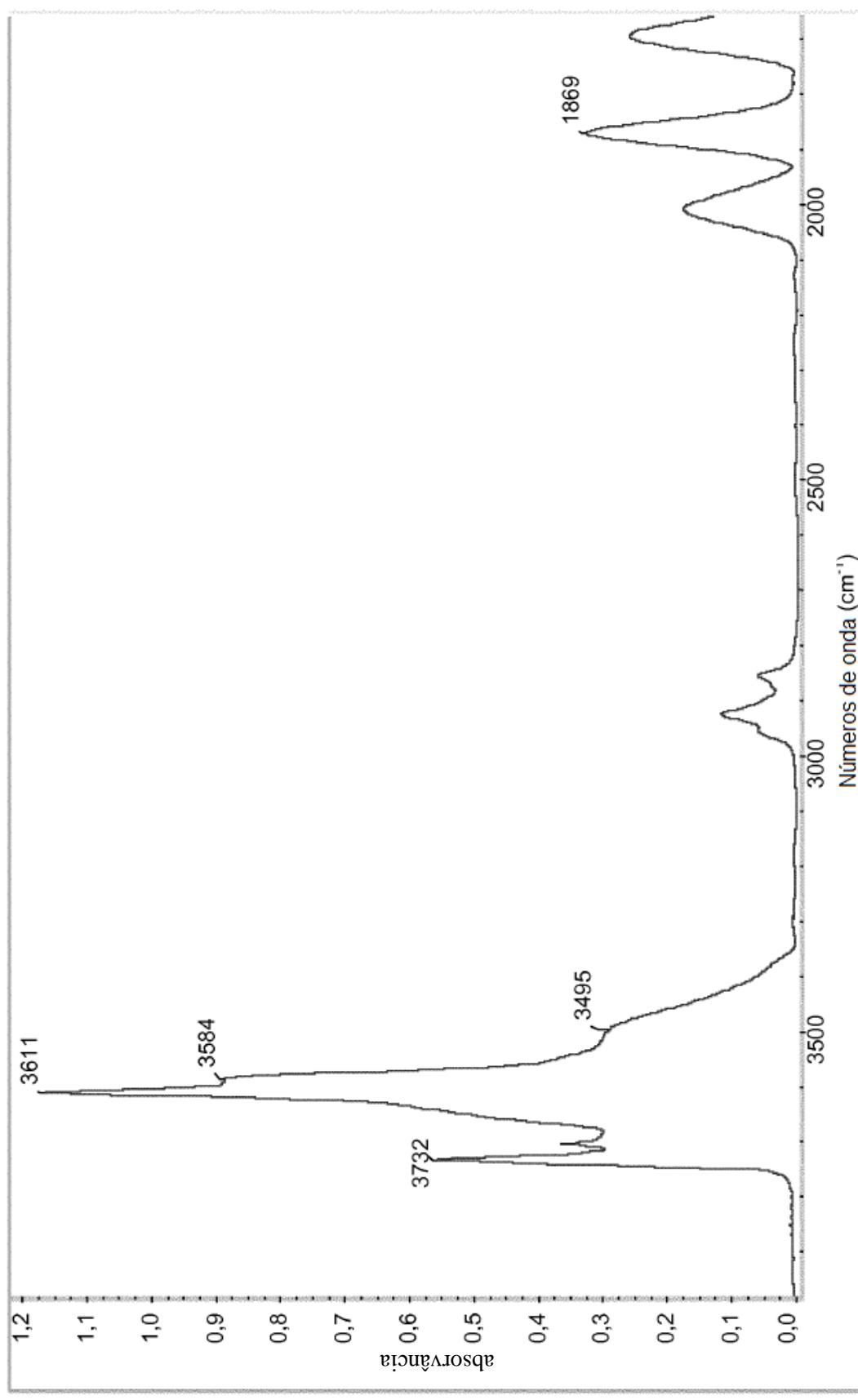
Figura 3

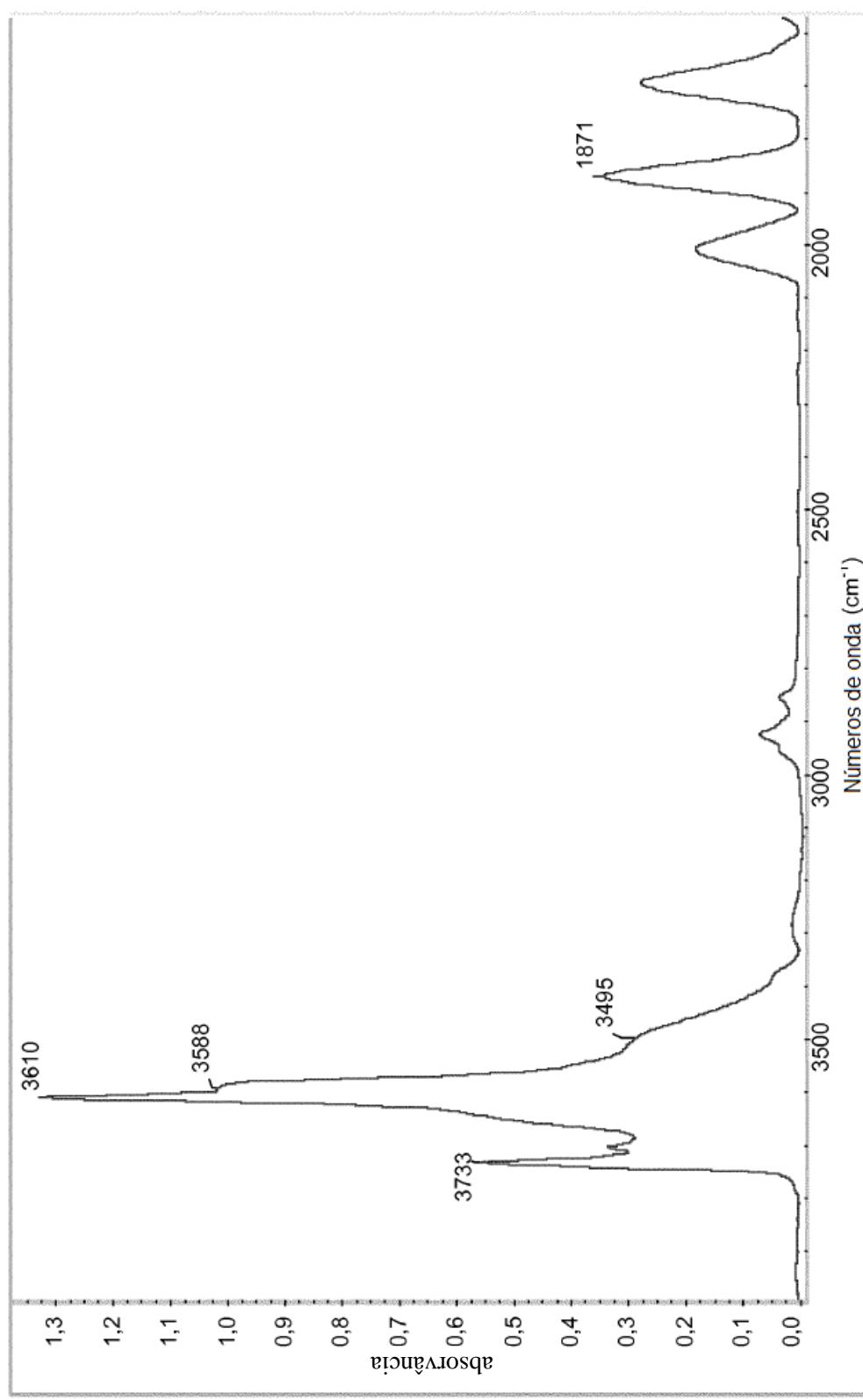
Figura 4

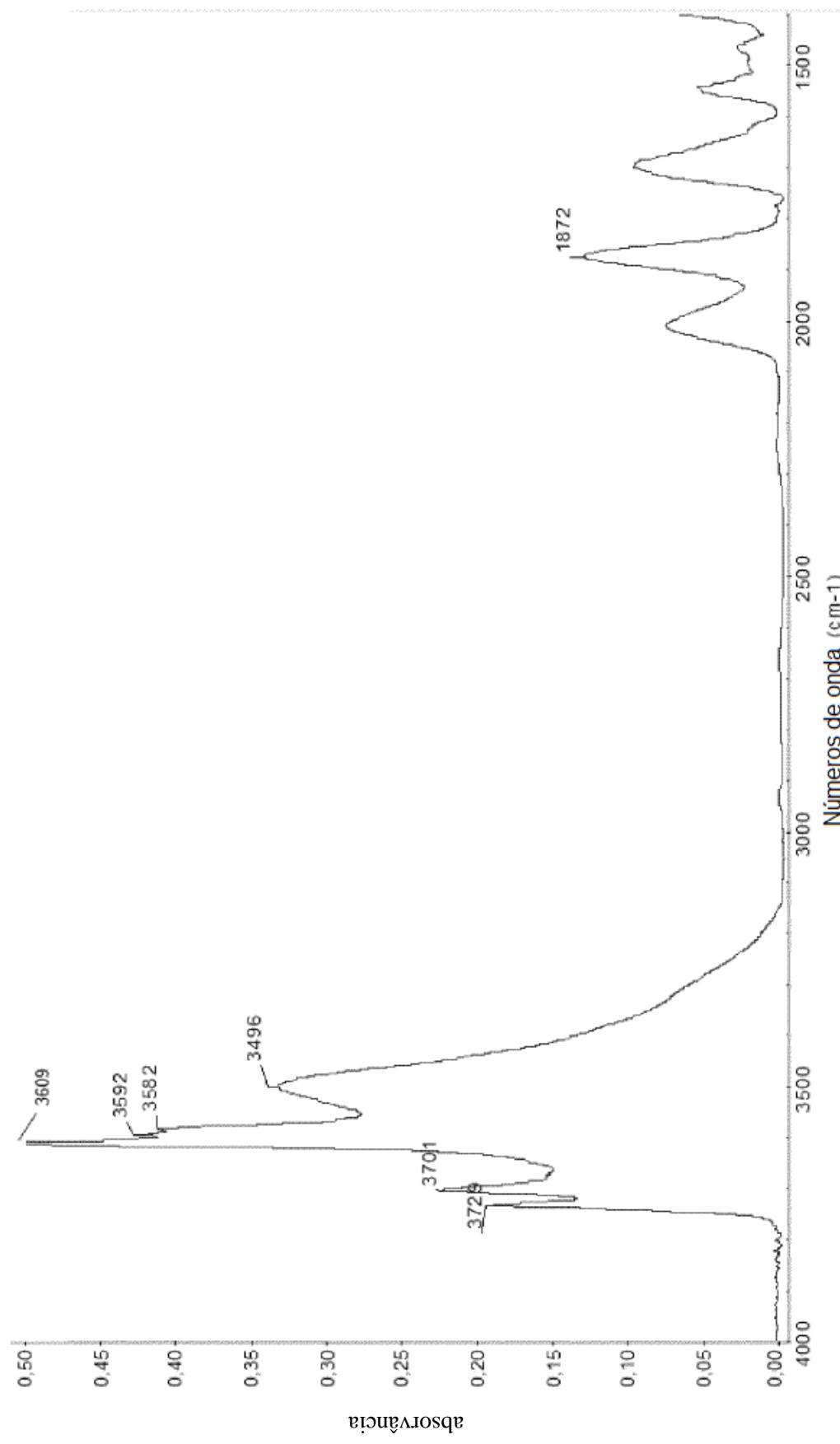
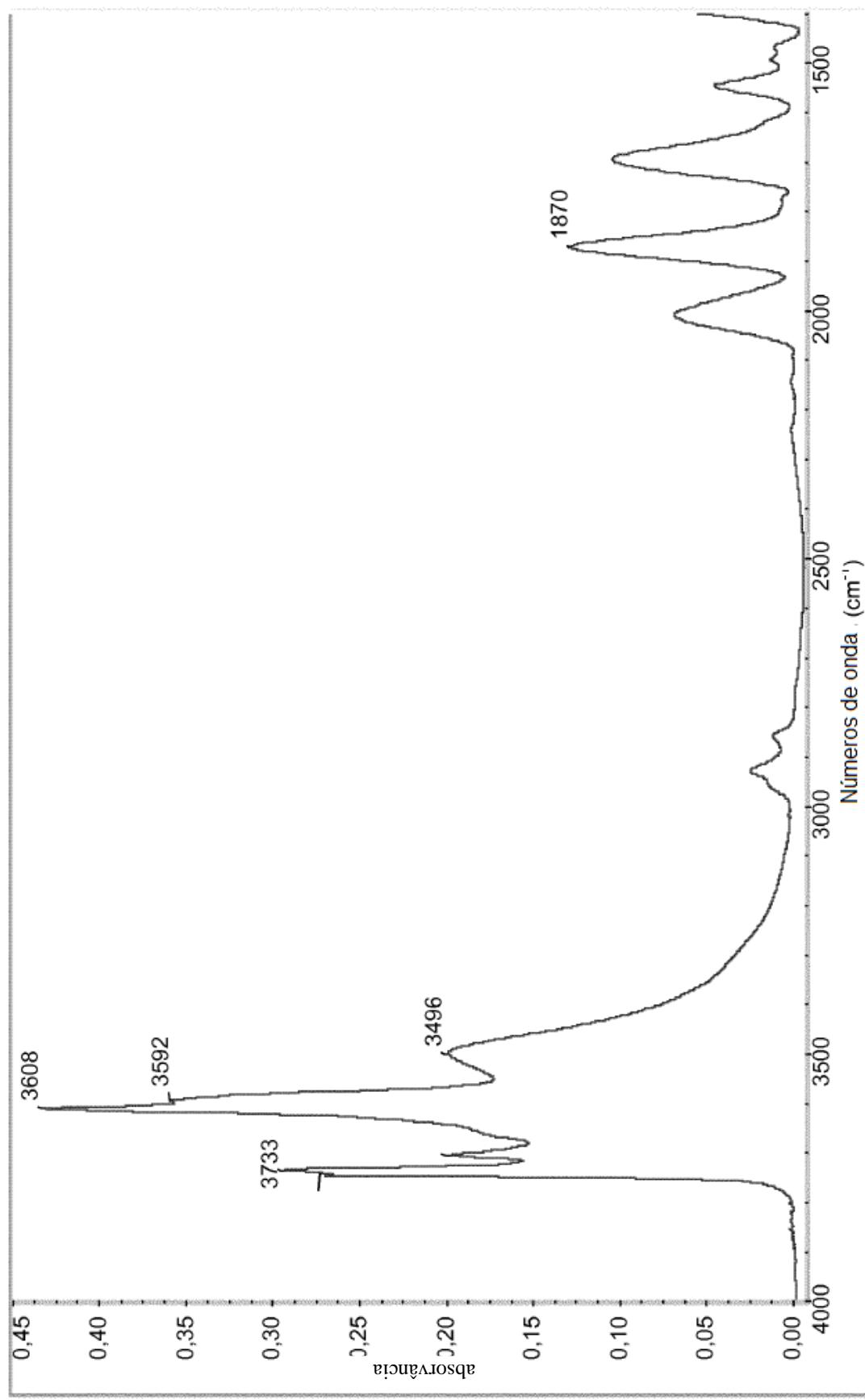
Figura 5

Figura 6

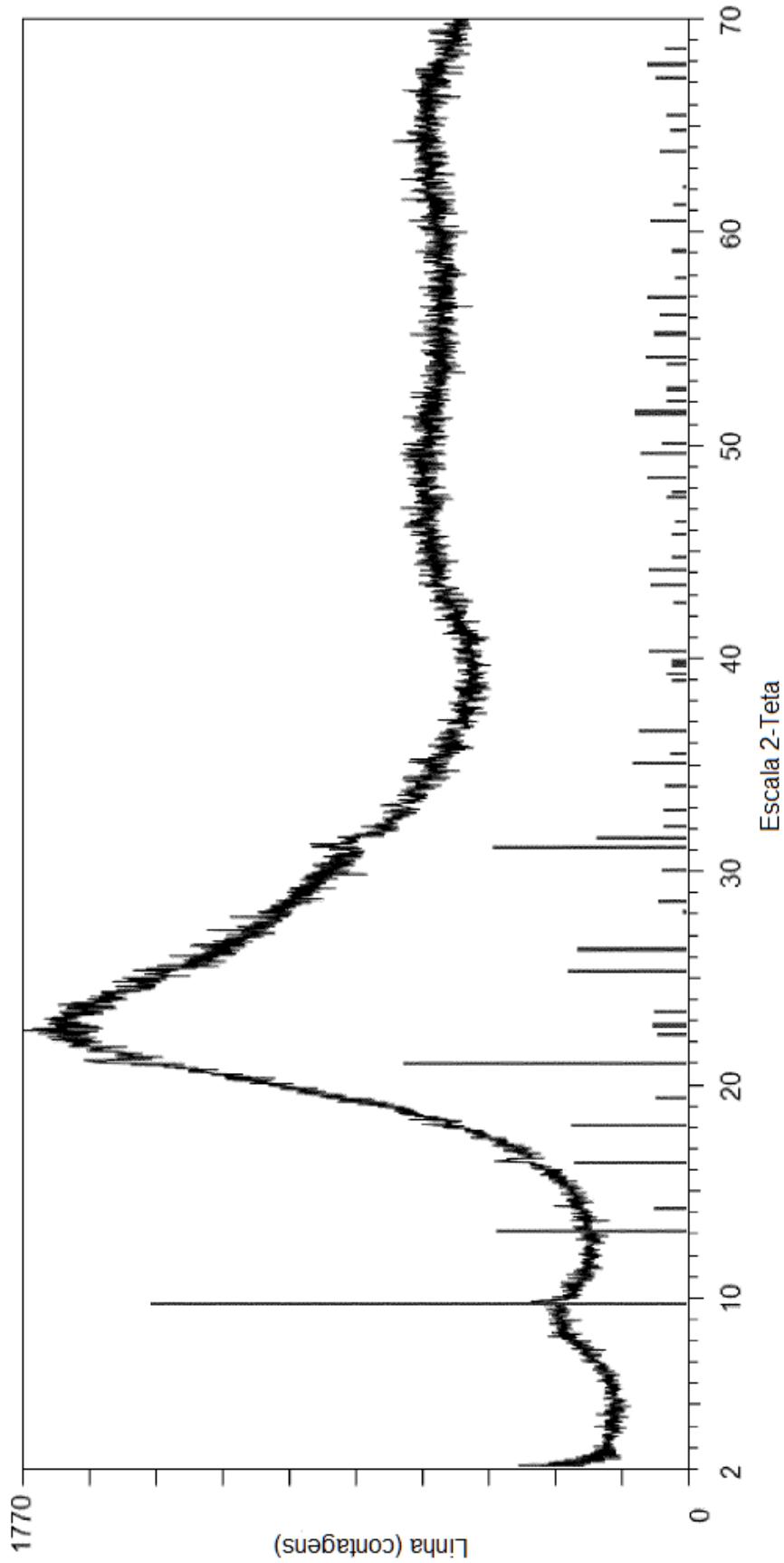


Figura 7

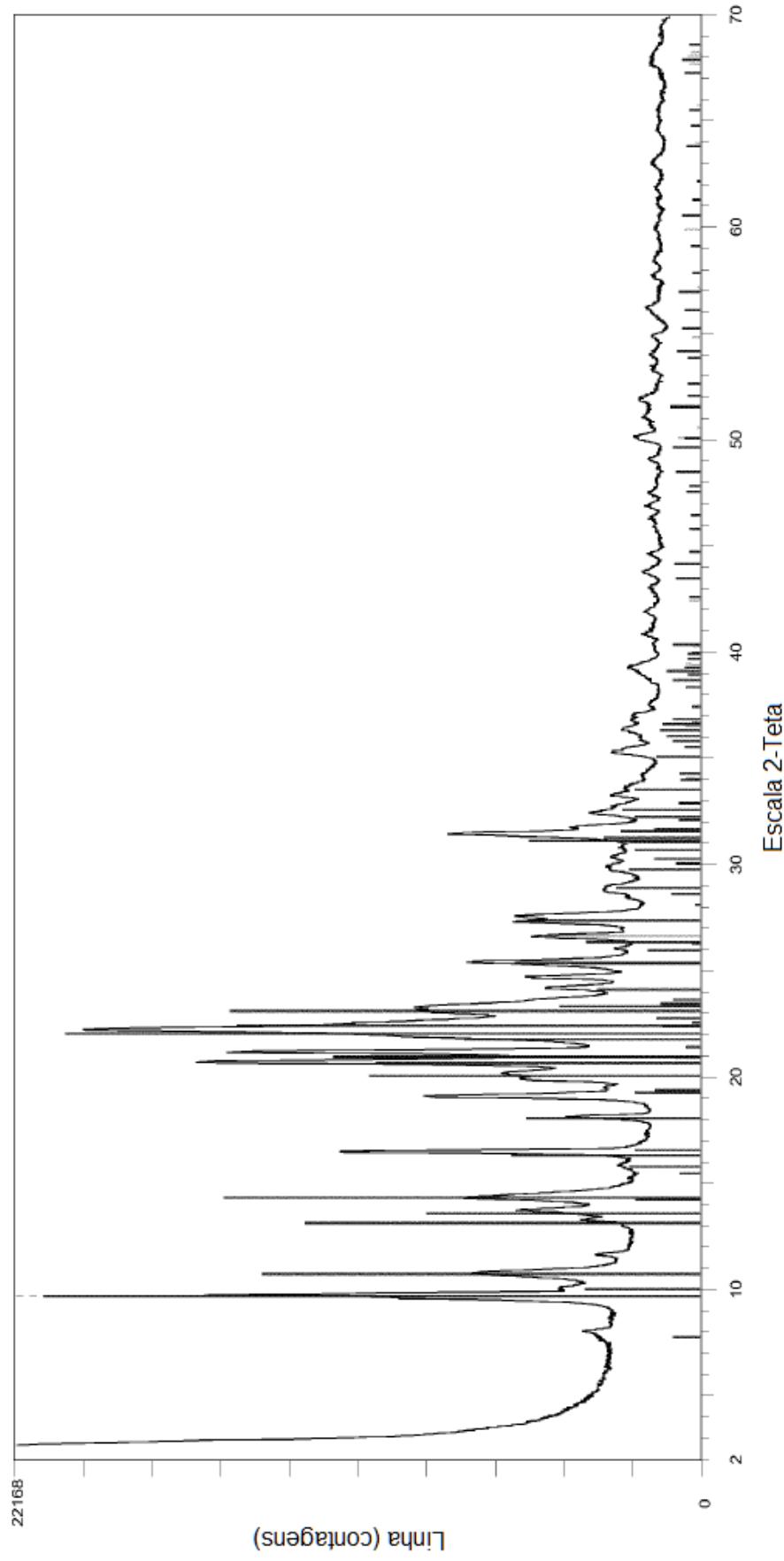


Figura 8