

ÖZET

KOMPOZİT OKSİT KATALİZÖR, BUNUN ÜRETİLMESİNE YÖNELİK YÖNTEM, VE DOYMAMIŞ NİTRİLİN ÜRETİLMESİNE YÖNELİK YÖNTEM

5

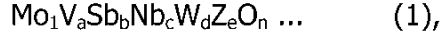
Mevcut buluşun bir amacı ilgili doymamış nitrilin üretilmesi için propan ve izobütan bir buhar faz katalitik amoksidasyon tepkimesine tabi tutulmasına yönelik bir yöntemde bir doymamış nitrilin verimini geliştirebilen ve CO₂ ve CO üretimini bastırabilen bir kompozit oksit katalizörü, ve kompozit oksit katalizör üretmeye yönelik bir yöntem ve kompozit oksit katalizörü kullanılarak bir doymamış nitril üretmeye yönelik bir yöntem sağlamaktır. Propan veya izobütan bir buhar faz katalitik oksidasyon tepkimesi veya buhar faz katalitik amoksidasyon tepkimesine yönelik olarak kullanılan bir kompozit oksit katalizör olup, kompozit oksit katalizör, şu bileşim formülü (1) ile temsil edilen bir kompozit oksit içermektedir: Mo₁V_aSb_bNb_cW_dZ_eO_n (1), burada bileşen (Z), La, Ce, Pr, Yb, Y, Sc, Sr, ve Ba'dan oluşan gruptan seçilen bir veya daha fazla elementtir; a, b, c, d, e, ve n elementlerin atomik oranları temsil etmektedir; ve $0.1 \leq a < 0.2$, $0.15 \leq b \leq 0.5$, $0.1 \leq c \leq 0.5$, $0 < d \leq 0.4$, $0 < e \leq 0.2$, ve $0.60 < a/b < 1.00$.

10

15

İSTEMLER

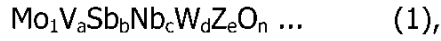
1. Propan ve izobütan bir buhar faz katalitik oksidasyon tepkimesi veya buhar faz katalitik amoksidasyon tepkimesine yönelik kullanılan bir kompozit oksit katalizör olup, kompozit oksit katalizör, aşağıdaki bileşim formülü (1) ile temsil edilen bir kompozit oksidi içermektedir:



burada bileşen Z, Ce'dir; a, b, c, d, e, ve n elementlerin atomik oranları temsil etmektedir; ve $0.1 \leq a < 0.2$, $0.15 \leq b \leq 0.4$, $0.01 \leq c \leq 0.5$, $0 < d \leq 0.4$, $0 < e \leq 0.2$, ve $0.60 < a/b < 0.85$.

2. Ayrıca, SiO₂ bakımından kütlece %20 ila 70 oranında silika içeren, İstem 1'e göre kompozit oksit katalizör.

3. Aşağıdaki bileşim formülü (1) ile temsil edilen bir kompozit oksit içeren bir kompozit oksit katalizörün üretilmesine yönelik bir yöntem olup:



burada bileşen Z, Ce'dir; a, b, c, d, e, ve n elementlerin atomik oranları temsil etmektedir; ve $0.1 \leq a < 0.2$, $0.15 \leq b \leq 0.4$, $0.01 \leq c \leq 0.5$, $0 < d \leq 0.4$, $0 < e \leq 0.2$, ve $0.60 < a/b < 0.85$,

yöntem aşağıdakileri içermektedir:

(I) Mo, V, Sb, Nb, W, ve Z içeren ve atomik oranlar için $0.1 \leq a < 0.2$, $0.15 \leq b \leq 0.4$, $0.01 \leq c \leq 0.5$, $0 < d \leq 0.4$, $0 < e \leq 0.2$, ve $0.60 < a/b < 0.85$ olan bir ham madde harmanlama sistemi hazırlamaya yönelik bir ham madde harmanlama adımı;

(II) bir kuru tozun elde edilmesi için ham madde harmanlama sisteminin kurutmaya yönelik bir kurutma adımı;

(III) bir kalsine gövdenin elde edilmesi için kuru tozu kalsine etmeye yönelik bir kalsinasyon adımı ve

(IV) kalsine gövdenin bir partikül yüzeyi üzerinde bulunan bir katı maddeyi gidermeye yönelik bir katı madde giderme adımı.

4. İstem 3'e göre kompozit oksit katalizörün üretilmesine yönelik yöntem olup, burada ham madde harmanlama adımı(I) aşağıdaki adımları içermektedir:

- 5 (a) Mo, V, Sb ve bileşen Z'yi barındıran bir sulu karışık sıvı hazırlanması;
(b) (a) adımıda elde edilen sulu karışık sıvıya silika sol ve hidrojen peroksit suyun eklenmesi;
(c) Nb, dikarboksilik asit ve hidrojen peroksit suyu barındıran bir sulu çözelti ve bir W-barındıran bileşik ile (b) adımıda elde edilen çözeltinin karıştırılması;ve
10 (d) çözeltinin yaşlandırılması için (c) adımıda elde edilen çözeltiye bir toz silika-barındıran süspansiyon sıvısı eklenmesi.

5. Propan veya izobütanı, bir buhar-faz katalitik oksidasyon tepkimesine veya bir buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesine tabi tutulması ile bir ilgili doymamış nitrilin üretilmesine yönelik bir yöntem olup, ilgili doymamış nitril, propan ve izobütandan elde edilmektedir, burada İstem 1 veya 2'ye göre kompozit oksit katalizör kullanılmaktadır
- 15

TARİFNAME

KOMPOZİT OKSİT KATALİZÖR, BUNUN ÜRETİLMESİNE YÖNELİK YÖNTEM, VE DOYMAMIŞ NİTRİLİN ÜRETİLMESİNE YÖNELİK YÖNTEM

5

Teknik Alan

Mevcut buluş, bir kompozit oksit katalizör, kompozit oksit katalizör üretmeye yönelik bir yöntem ve kompozit oksit katalizör kullanılarak bir doymamış nitril üretmeye yönelik bir yöntem ile ilgilidir.

10

Önceki Teknik

Günümüzde, genel olarak piyasada satılan bir doymamış nitril esas olarak, olefin, amonyak ve oksijenin katalitik amoksidasyon tepkimesi ile endüstriyel olarak üretilmektedir. Diğer yandan, son zamanlarda, bir ilgili doymamış nitrilin üretilmesi için olefinin yerine ham madde olarak propan veya izobütan gibi bir alkan bir buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesine tabi tutulması yönelik bir yöntem insanlar ilgisini çekmiştir. Bu durumda kullanılan çeşitli katalizörler aynı zamanda önerilmektedir.

20

Patent Literatürü 1, Mo, V, Nb, ve B barındıran bir kompozit metal oksidin, propan veya izobütan buhar-faz katalitik oksidasyonu veya buhar faz katalitik amoksidasyonuna yönelik bir katalizör olarak, bir oksit ve silikan toplam kütesine dayanarak SiO_2 bakımından %20 ila 60 oranında silika kütesi ile desteklendiği bir katalizörü açıklamaktadır

25

Patent Literatürü 2, bir doymamış nitrilin üretilmesi için bir propan veya izobütan bir buhar faz katalitik amoksidasyon tepkimesine tabi tutulması veya propan veya izobütan, bir doymamış karboksilik asit üretmesi için bir buhar faz katalitik oksidasyona tabi tutulması durumunda kullanılan bir silika-destekli katalizörü açıklamaktadır burada silika-destekli katalizör, bir spesifik metal bileşen bileşimine, bir silika içeriği h_2O ve bir gözenek hacmine sahiptir.

30

Genel olarak, bir MoVSbO_x tip amoksidasyon katalizöründe odağın V/Sb oranında olması durumunda V, Sb'den daha fazladır. Bu tür bir oran, hidrotermal sentez veya benzeri (örneğin, bakınız Patent Olmayan Literatür 1) ile sentezlenen bir amoksidasyon katalizöründe

35

iyi bilinmektedir. Bu yüzden, hidrotermal sentez yönteminde bir yöntem ile hazırlanan bir MoV tip amoksidasyon kompozit oksit katalizöründe, V ile Sb miktarı mümkünse miktarı azaltmak için veya miktarı artırmak için ayarlanmaktadır

- 5 Patent Literatürü 3, bir gelişmiş tepkime verimine ve katalizör ömrüne sahip olan bir katalizörü göstermektedir. Bununla birlikte, yüksek miktarda V hala kullanılmaktadır Diğer yandan, asit tepkimesinde, aktif bir yapıdaki Mo'nun, Mo sülfürüna yol açan bir katalitik tepkime veya bir yan tepkime ile üretilen su ile bir kompleks oluşturduğu bilinmektedir. Bir MoV kompozit kristalinin durumunda, Mo sülfürü, aşırı bir şekilde ham maddeye aktivitenin
- 10 arttırılması için kompozit kristalde V'yi nispeten arttırmaktadır

- JP 2003-320248 numaralı patent dokümanı, propanı akrilonitrile amoksidasyonunda kullanılan birçok elementli oksit katalizörü açıklamaktadır Katalizöre dahil edilen metal bileşenler en azından molibden, vanadyum, antimoni ve niyobyumdur. Doküman aynı
- 15 zamanda, ilgili doymamış asit veya doymamış nitrilin seçiciliğinin bir buhar faz katalitik oksidasyonunda veya bir alkan bir buhar faz katalitik amoksidasyon tepkimesinde yüksek olduğu bir katalitik hazırlamaya yönelik bir yöntemin sağlanması için, katalizör preparasyon yönteminde, tavlamanın, pişirmenin tamamlanmasından sonra pişirme sıcaklığından daha düşük bir sıcaklıkta gerçekleştirildiğini açıklamaktadır

20

Aktif Listesi

Patent Literatürü

- 25 Patent Literatürü 1: 2001-276618 Numaralı Japon Patenti İncelemeye Açık Başvuru
Patent Literatürü 2: 2002-219362 Numaralı Japon Patenti İncelemeye Açık Başvuru
Patent Literatürü 3: WO2012-090979 Numaralı Uluslararası Yayın

Patent Olmayan Literatür

30

Patent Olmayan Literatür 1: Ind. Eng. Chem. Res., Cilt 45, NO.2, 2006 P607-614

Buluşun Kısa Açıklaması

- 35 Teknik Sorun

Verimde daha fazla bir gelişme, yukarıda bahsedilen sebeplerden ötürü endüstriyel üretim için gerekmektedir. Yukarıda bahsedilen Patent Literatürleri 1 ila 3'te açılan katalizörlerin kullanılması halinde bile, karbon dioksit (CO₂) ve karbon monoksit (CO) gibi birçok yan ürün 5 üretilmektedir, bu durum doymamış nitrilin doymamış verimini ortaya çıkarmaktadır. CO₂ ve CO, uygulaması olmayan bileşiklerdir. Bunun üretiminin uygulamadan kaldırılması aynı zamanda ham maddenin etkili kullanılması yol açmaktadır.

Mevcut buluşa, yukarıda bahsedilen sorunlar doğrultusunda ulaşılmaktadır. Mevcut buluşun 10 bir amacı ilgili doymamış nitrilin üretilmesi için propan ve izobütan bir buhar fazı katalitik amoksidasyon tepkimesine tabi tutulmasıyla yönelik bir yöntemde bir doymamış nitrilin verimini geliştirebilen ve CO₂ ve CO üretimini bastırabilen bir kompozit oksit katalizörü, ve kompozit oksit katalizör üretmeye yönelik bir yöntem ve kompozit oksit katalizörü kullanarak bir doymamış nitril üretmeye yönelik bir yöntem sağlamaktadır.

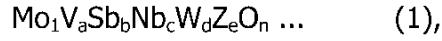
15 Soruna Yönelik Çözüm

Mevcut buluş sahipleri, yukarıda bahsedilen sorunlara yönelik incelemeler yürütmüştür. Mevcut buluş sahipleri, vanadyumun (V), CO₂ ve CO üretimine dahil olduğunu bulmuştur. Mo 20 veya Nb gibi başka bir metal ile kompleks haline getirilmeyen fazla (V), geleneksel katalizörde belirli bir faktöre uygun olarak mevcut olduğu için CO₂ ve CO'nin büyük miktarda üretildiği anlaşılmaktadır. Aynı zamanda, Mo'nun, kompozit oksit katalizörde V'yi nispeten artırmak, ve ham maddeye etkinliği artırma derecesi artırmak, böylelikle yan tepkime üretimini hızlandırmak üzere tepkime sırasında sızıntı yaptığı bulunmuştur. Diğer yandan, kompozit 25 oksit katalizörde V'deki bir azalma, şimdiye dek düşünülen aktif türlerin bir metal bileşiminden sapmaya sebep olabilmektedir ve ham maddeye etkinliği artırma derecede azaltabilmektedir. Bu yüzden, kompozit oksit katalizörde V'deki azalma göz önünde bulundurulmamaktadır.

30 Sonrasında, yukarıda bahsedilen sorunların çözülmesi amacıyla, mevcut buluş sahipleri, Mo'ya düşük bir V bileşimine ve bir verimde gelişmeye ulaşması için istekli bir inceleme gerçekleştirmiştir. Mevcut buluş sahipleri bir Mo'nun V'ye oranı ve bir V'nin Sb'ye oranı belirli bir aralıkta bulunması durumunda, performans, fazla (V) azalırken geliştiğini bulmuştur. Sonuç olarak, mevcut buluş tamamlanmıştır.

Başka bir deyişle, mevcut buluş aşağıdaki şekildedir.

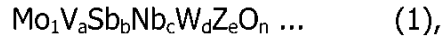
[1] Propan ve/veya izobütan bir buhar faz katalitik oksidasyon tepkimesi veya buhar faz katalitik amoksidasyon tepkimesine yönelik olarak kullanılan bir kompozit oksit katalizör olup, kompozit oksit katalizör, şu bileşim formülü (1) ile temsil edilen bir kompozit oksit içermektedir:



burada bileşen (Z), Ce'dir; a, b, c, d, e, ve n elementlerin atomik oranları temsil etmektedir; ve $0.1 \leq a < 0.2$, $0.15 \leq b \leq 0.4$, $0.01 \leq c \leq 0.5$, $0 < d \leq 0.4$, $0 < e \leq 0.2$, ve $0.60 < a/b < 0.85$.

[2] Ayrıca, SiO₂ bakımından kütlece %20 ila 70 oranında silika içeren, [1]'e göre kompozit oksit katalizör.

[3] Bir kompozit oksit katalizör üretmeye yönelik bir yöntem olup, şu bileşim formülü (1) ile temsil edilen bir kompozit oksidi içermektedir:



burada bileşen (Z), Ce'dir; a, b, c, d, e, ve n elementlerin atomik oranları temsil etmektedir; ve $0.1 \leq a < 0.2$, $0.15 \leq b \leq 0.4$, $0.01 \leq c \leq 0.5$, $0 < d \leq 0.4$, $0 < e \leq 0.2$, ve $0.60 < a/b < 0.85$, yöntem aşağıdakileri içermektedir:

(I) Mo, V, Sb, Nb, W, ve Z içeren ve atomik oranlar için $0.1 < a < 0.2$, $0.15 < b < 0.4$, $0.01 < c < 0.5$, $0 < d < 0.4$, $0 < e < 0.2$, ve $0.60 < a/b < 0.85$ olan bir ham madde harmanlama süreci hazırlamaya yönelik bir ham madde harmanlama adımı;

(II) bir kuru tozun elde edilmesi için ham madde harmanlama sürecini kurutmaya yönelik bir kurutma adımı;

(III) bir kalsinasyon gövdenin elde edilmesi için kuru tozu kalsine etmeye yönelik bir kalsinasyon adımı ve

(IV) kalsine gövdenin bir partikül yüzeyi üzerinde bulunan bir çirkin maddeyi gidermeye yönelik bir çirkin madde giderme adımı.

[4] [3]'e göre kompozit oksit katalizör üretmeye yönelik yöntem olup, burada ham madde harmanlama adımı (I) aşağıdaki adımları içermektedir:

- (a) Mo, V, Sb ve bileşen Z barındıran bir sulu karışık sıvının hazırlanması;
(b) (a) adında elde edilen sulu karışık sıvıya silika sol ve hidrojen peroksit suyun eklenmesi;
(c) Nb, dikarboksilik asit ve hidrojen peroksit suyu barındıran bir sulu çözelti ve bir W-barındıran bileşik ile (b) adında elde edilen çözeltinin karıştırılması; ve
(d) çözeltinin yaşlandırılması için (c) adında elde edilen çözeltiye bir toz silika-barındıran süspansiyon sıvısının eklenmesi.

[5] Propan veya izobütan, bir buhar-faz katalitik oksidasyon tepkimesine veya bir buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesine tabi tutulması ile bir ilgili doymamış nitril üretmeye yönelik bir yöntem olup, ilgili doymamış nitril, propan ve izobütandan elde edilmektedir, burada [1] veya [2]'ye göre kompozit oksit katalizör kullanılmaktadır

Buluşun Avantajları/Etkileri

Mevcut buluş, CO₂ ve CO oluşumunu ortadan kaldıracak ve bir doymamış nitrilin verimini geliştirebilen bir kompozit oksit katalizör gerçekleştirebilmektedir. Mevcut buluş aynı zamanda, kompozit oksit katalizörün düşük maliyetle kolaylıkla üretilbildiği bir kompozit oksit katalizör üretmeye yönelik bir yöntem gerçekleştirebilmektedir. Ayrıca, CO₂ ve CO oluşumunu ortadan kaldıracak ve bir doymamış nitrilin verimini geliştirebilen bir doymamış nitril üretmeye yönelik bir yöntem, kompozit oksit katalizör kullanılarak gerçekleştirilebilmektedir.

Yapılandırmanın Açıklaması

Bundan sonra, mevcut buluşu gerçekleştirmeye yönelik bir mod (bundan sonra, yalnızca "mevcut yapılandırma" olarak ifade edilen) ayrıntılı olarak açıklanacaktır. Aşağıdaki mevcut yapılandırma mevcut buluşun örneklerle açıklanması amacıyla sunulmaktadır. Mevcut buluş, aşağıdaki içeriklere sınırlı olarak yorumlanmamalıdır. Mevcut buluş, buluşun kapsamı dahilinde uygun modifikasyon yaparken gerçekleştirilebilmektedir.

[Kompozit Oksit Katalizör]

Mevcut yapılandırmaya ait bir kompozit oksit katalizör, propan ve izobütan bir buhar-faz katalitik oksidasyon tepkimesi veya buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesi için

kullanılabilmektedir ve yukarıda bahsedilen bileşim formülü (1) ile temsil edilen bir kompozit oksidi içermektedir.

5 Oluşturulan bir doymamış nitrilin ayrışma tepkimesinin önlenmesi bakımından, kompozit oksit katalizörde, bileşen (Z)'nin bir katalizör partikülde birörnek olarak dağılması tercih edilmektedir. "Birörnek olarak" terimi, bileşen (Z)'nin dağıtılan katalizör partikülde orantısız olmadığı anlamına gelmektedir. Tercihen, "birörnek olarak" terimi, bileşen (Z)'yi barındıran %80 veya daha fazla (kütlece yüzde) oksit partikülleri, her birinin 1 µm veya daha az bir partikül çapına sahip olduğu ince partiküller olarak katalizör partikülünde bulunmaktadırlar.

10 Birörneklik bakımından, kompozit oksit katalizörün silika barındırması durumunda, bileşen (Z)'nin (Si)'ye bir sinyal kuvveti oranında bir dispersiyon değeri (bir standart sapmanın bir ortalama değere bölünmesi ile elde edilen değer), katalizör partikülünün bir en-kesitinin bileşim analizi sırasında tercihen 0 ila 0.5 aralığında, daha tercihen 0 ila 0.4 aralığında, ve daha da tercihen 0 ila 0.3 aralığında olmalıdır. Burada, sinyal kuvvetinin dispersiyon değeri, sonra

15 açıklanacağı üzere "Dx" ile temsil edilmektedir.

Mevcut yapılandırılan kompozit oksit katalizöründe nitril veriminin geliştirilmesi bakımından, bir V'nin Mo'ya atomik oranında (a) ve V'nin Sb'ye oranında (a/b) şeklinde $0.1 \leq a < 0.2$ aralığında ve $0.60 < a/b < 0.85$ aralığında ayarlanması önemlidir. Mevcut buluş sahiplerinin incelemesinden, diğer metal bileşenleri ile iyice kompleks haline getirilmeyen aşırı derecede fazla (V) geleneksel katalizörde mevcut değildir ve aşırı derecede fazla (V), CO₂ ve CO'nun oluşturulmasına yönelik ve doymamış nitril veriminin azaltılmasına yönelik bir faktör olmaktadır. Sonrasında, Mo'nun V'ye oranında ve V'nin Sb'ye oranında odaklanılması ve istekli incelemenin sonucunda, aşırı derecede fazla (V)'nin, V'nin Mo'ya atomik oranında ve

20 V'nin Sb'ye oranında, şeklinde $0.1 \leq a < 0.2$ aralığında ve $0.60 < a/b < 0.85$ aralığında ayarlanması ile ortadan kaldırılabildiği anlaşılmıştır. Böylelikle, aşırı derece fazla (V) ortadan kaldırılmaktadır ve dolayısıyla CO₂ ve CO oluşumu, ham maddeye etkinlik azaltılmasından ortadan kaldırılabilmektedir ve doymamış nitril verimi geliştirilebilmektedir.

30 Mevcut buluş sahipleri incelemeler yürütmüştür ve bir hedef veriminin, V'nin Mo'ya atomik oranında ve V'nin Sb'ye oranında yukarıda bahsedilen spesifik aralıklar dahilinde olması durumunda geliştirildiğini bulmuştur. V'nin Mo'ya atomik oranında, $0.1 \leq a < 0.2$ aralığında olması durumunda, Mo'nun esas olarak bulunması gerektiği bir yer, propan etkinliği için gerekli olan bir kristal yapıda V oranında artırılması için V ile ikame edilmektedir, bu durum

35 etkinliği geliştirmektedir. V'nin Sb'ye oranında, $0.60 < a/b < 0.85$ aralığında olması

durumunda, V ve Mo'nun, V ve Mo'nun oksitlerinin birikimini ortadan kaldıran, katalizör kalsinasyon sırasında oksitlenmesi olası değildir. Bu yüzden, kompozit oksit katalizöründe aktif türlerin miktarının, bir hedef ürününün seçiciliğinin geliştirilmesi için nispeten artırıldığı varsayılmaktadır. Yukarıda bahsedilen açıdan, a, tercihen $0.12 \leq a < 0.2$ aralığında ve daha tercihen $0.13 \leq a < 0.2$ aralığındadır. a/b, $0.60 < a/b < 0.85$ aralığındadır. a ve a/b, yukarıda bahsedilen aralıklar arasındadır ve bu yüzden CO₂ ve CO'nun oluşumu daha da ortadan kaldırılabilmektedir ve doymamış nitril verimi daha da geliştirilebilmektedir.

b, $0.15 \leq b \leq 0.4$ aralığındadır ve tercihen $0.15 \leq b \leq 0.3$ aralığındadır. c, $0.01 \leq c \leq 0.5$ aralığındadır. tercihen $0.01 \leq c \leq 0.4$ aralığındadır ve daha da tercihen $0.01 \leq c \leq 0.35$ aralığındadır. Ayrıca, d, $0 < d \leq 0.4$ aralığındadır. tercihen $0 < d \leq 0.3$ aralığındadır ve daha da tercihen $0 < d \leq 0.25$ aralığındadır. Ayrıca, e, $0 < e \leq 0.2$ aralığındadır. tercihen $0 < e \leq 0.15$ aralığındadır ve daha da tercihen $0 < e \leq 0.1$ aralığındadır. b, c, d, ve e, yukarıda aralıklardadır ve böylelikle CO₂ ve CO daha da ortadan kaldırılabilmektedir ve doymamış nitril verimi daha da geliştirilebilmektedir.

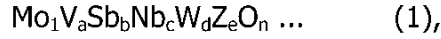
n, bir oksijen atomu içerir ve a, b, c, d, ve e ile karar verilen bir sayısal değerdir. Z, Ce'dir.

Tercihen, mevcut yapılandırılan kompozit oksit katalizörü ayrıca, bir kompozit oksit ve silika barındıran bir katalizörün toplam, kütlesine dayanarak SiO₂ bakımından kütlece %20 ila 70 silika, daha tercihen kütlece %40 ila 65 silika ve daha da tercihen kütlece %40 ila 60 silika barındırmaktadır. Silika içeriği, kütlece %20 veya daha fazladır ve bu yüzden katalizörün kuvveti daha da gelişmeye eğilimlidir. Silika içeriği, kütlece %70 veya daha azdır ve böylelikle katalizör daha yüksek etkinliğe sahip olmaya eğilimlidir.

Bir katalizör-oluşturan elementin bir konsantrasyonunu ölçmeye yönelik bir yöntem özellikle sınırlı değildir. Bir metal konsantrasyonuna ölçmeye yönelik bir genel yöntem benimsenebilmektedir. Örneğin, X-ışın floresan analizi (XRF) kullanılabilmektedir. Bir katı partikül katalizöründeki bir metalin bir konsantrasyonunun ölçülmesi durumunda, XRF, ölçüm kolaylığı ve miktar saptamasının kesinliği veya benzeri bakımından uygun bir şekilde kullanılabilmektedir. Bir az miktardaki metalin analiz edilmesi durumunda, bir katalizör, uygun bir çözeltide çözündürülmektedir ve miktar, ICP veya çözelti spektroskopisi kullanılarak atomik absorpsiyon ile saptanabilmektedir. Karbon, hidrojen ve nitrojen miktarlarının saptanması arzu edildiğinde, CHN analizi uygun bir şekilde kullanılabilmektedir. Yukarıdaki Dx, EPMA veya benzeri ile elde edilebilmektedir.

[Kompozit Oksit Katalizörün Üretilmesine yönelik Yöntem]

Mevcut yapılandırılan bir kompozit oksit katalizörünü üretmeye yönelik bir yöntem, aşağıdaki bileşim formülü (1) ile temsil edilen bir kompozit oksidi içeren bir kompozit oksit katalizör üretmeye yönelik bir yöntemdir:



burada bileşen (Z), Ce'dir; a, b, c, d, e, ve n elementlerin atomik oranları temsil etmektedir; ve $0.1 \leq a < 0.2$, $0.15 \leq b \leq 0.4$, $0.01 \leq c \leq 0.5$, $0 < d \leq 0.4$, $0 < e \leq 0.2$, ve $0.60 < a/b < 0.85$, yöntem aşağıdakileri içermektedir:

(I) Mo, V, Sb, Nb, W, ve Z içeren ve atomik oranlar için $0.1 \leq a < 0.2$, $0.15 \leq b \leq 0.4$, $0.01 \leq c \leq 0.5$, $0 < d \leq 0.4$, $0 < e \leq 0.2$, ve $0.60 < a/b < 0.85$ olan bir ham madde harmanlama süreci hazırlamaya yönelik bir ham madde harmanlama adımı;

(II) bir kuru tozun elde edilmesi için ham madde harmanlama süreci kurutmaya yönelik bir kurutma adımı;

(III) bir kalsinasyon gövdenin elde edilmesi için kuru tozu kalsine etmeye yönelik bir kalsinasyon adımı; ve

(IV) kalsine gövdenin bir partikül yüzeyi üzerinde bulunan bir katalizör maddenin gidermeye yönelik bir katalizör maddenin giderme adımı.

[(I) Ham Madde Harmanlama Adımı]

Mevcut yapılandırılan ham madde harmanlama adımı, örneğin ham madde harmanlama süreci, Mo'nun bir atomuna V'nin bir atomik oranı (a), Sb'nin bir atomik oranı (b), Nb'nin bir atomik oranı (c), W'nin bir atomik oranı (d), ve Z'nin bir atomik oranı (e), süreci $0.1 \leq a < 0.2$, $0.15 \leq b \leq 0.4$, $0.01 \leq c \leq 0.5$, $0 < d \leq 0.4$, ve $0 < e \leq 0.2$, ve $0.60 < a/b < 0.85$ aralıklarında. Bileşim oranı nihai olarak elde edilen kompozit oksit katalizörünün bileşim oranından farklı bir değere ayarlanmaktadır. Bunun sebebi, daha sonra açılacak olan bir katalizörün bir katalizör maddenin, katalizörün ana gövdesinin bileşiminden farklı bir bileşime sahip olmasıdır. tüm katalizörün bileşim oranı aynı zamanda katalizör ana gövdesinden katalizör maddenin giderilmesi ile değiştirilmektedir; ve bileşim oranı ham madde harmanlama adımıdaki değişiklik hesaba katılarak ayarlanmaktadır.

Mevcut tarifnamede, "çıkartılacak madde", sonra açıklanacak olan nihai kalsinasyon ile elde edilen bir kalsine gövdenin yüzeyi üzerine sıran ve/veya yapılan bir nesne anlamına gelmektedir. "Çıkartılacak madde", kalsine gövdesinin yüzeyinden çıkartılan veya yüzey üzerine yapılan bir nesne anlamına gelmektedir.

5

(Katalizörün Preparasyonu)

Mo'ya yönelik bir ham madde özellikle sınırlı değildir. Spesifik olarak, amonyum heptamolibdat $[(NH_4)_6Mo_7O_{24} \cdot 4H_2O]$, molibden trioksit $[MoO_3]$, fosfomolibdik asit $[H_3PMo_{12}O_{40}]$, silikomolibdik asit $[H_4SiMo_{12}O_{40}]$, ve molibden pentaklorür $[MoCl_5]$ veya benzeri kullanılabilmektedir. Bunların arasında, amonyum heptamolibdat $[(NH_4)_6Mo_7O_{24} \cdot 4H_2O]$ özellikle tercih edilmektedir.

V'ye yönelik bir ham madde özellikle sınırlı değildir. Spesifik olarak, amonyum metavanadat $[NH_4VO_3]$, vanadyum pentoksit $[V_2O_5]$, ve vanadyum klorür $[VCl_4, VCl_3]$ veya benzeri kullanılabilmektedir. Bunların arasında, amonyum metavanadat $[NH_4VO_3]$ özellikle tercih edilmektedir.

Sb'ye yönelik bir ham madde özellikle sınırlı değildir. Spesifik olarak, antimoni oksit $[Sb_2O_3, Sb_2O_5]$, antimonius asit $[HSbO_2]$, antimonik asit $[HSbO_3]$, amonyum antimonat $[(NH_4)SbO_3]$, antimoni klorür $[Sb_2Cl_3]$, ve antimoninin bir tartratı ve metal antimoni gibi bir organik asit tuzu veya benzeri kullanılabilmektedir. Bunların arasında, diantimoni trioksit $[Sb_2O_3]$ özellikle tercih edilmektedir.

Nb'ye yönelik bir ham madde özellikle sınırlı değildir. Spesifik olarak, niyobik asit, bir inorganik niyobat ve bir organik niyobat kullanılabilmektedir. Özellikle, niyobik asit tercih edilmektedir. Niyobik asit, $Nb_2O_5 \cdot nH_2O$ ile temsil edilmektedir ve aynı zamanda niyobyum hidroksit veya niyobyum oksit hidrat olarak simgelenmektedir. Ayrıca, bir dikarboksilik asit/niyobyumun mol oranının 1 ila 4 olduğu bir Nb ham maddesi tercihen Nb'ye yönelik ham madde olarak kullanılmaktadır. Dikarboksilik asit olarak, oksalik asit tercih edilmektedir.

W'ya yönelik bir ham madde özellikle sınırlı değildir. Spesifik olarak, bir amonyum tuzu, bir nitrat, bir karboksilat, amonyum karboksilat, bir peroksokarboksilat, amonyum peroksokarboksilat, bir halojenli amonyum tuzu, bir halojenür asetilasetonat, bir alkoksit, bir trifenil bileşiği, bir polioksometalat, amonyum polioksometalat gibi bir tungsten tuzu;

tungsten trioksit, tungsten dioksit, tungstik asit, bir amonyum metatungstat sulu çözelti, amonyum paratungstat, silikotungstomolibdik asit ve tungstosilisik asit veya benzeri kullanılabilmektedir. Bunlar arasında, amonyum meta-tungstat sulu çözeltisi tercih edilmektedir.

5

Z'ye (yani Ce) yönelik bir ham madde, Z'ye yönelik ham madde Z barındıran sürece özellikle sınırlı değildir. Z barındıran bileşikler ve Z metalinin uygun bir reaktif ile çözündürüldüğü bir malzeme kullanılabilmektedir. Z barındıran bileşik olarak, genellikle, bir amonyum tuzu, bir nitrat, bir karboksilat, amonyum karboksilat, bir peroksokarboksilat, amonyum peroksokarboksilat, bir halojenli amonyum tuzu, bir halojenür, asetilasetonat, bir alkoksit veya benzeri kullanılabilmektedir. Bunlar arasında, bir nitrat veya bir karboksilat gibi bir sulu ham madde tercihen kullanılmaktadır

10

Ham maddelerin harmanlanmasında, katalizör-oluşturan elementlere ait ham maddelerin çözündürme prosedürü, karıştırma prosedürü, veya dağıtma prosedürü özellikle sınırlı değildir. Ham maddeler, aynı sulu ortamda çözündürülebilmekte, karıştırılabilmekte veya dağıtılabilmektedir. Alternatif olarak, ham maddeler sulu ortamlarda ayrı ayrı çözündürülebilmekte, karıştırılabilmekte veya dağıtılabilmektedir ve sonrasında sulu ortamlar karıştırılabilmektedir. Isıl ve/veya çalkalama gerekli olduğunda gerçekleştirilebilmektedir.

15

20

Mevcut yapılandırmadaki kompozit oksit katalizörleri, silika barındıran bir katalizör ve tercihen silika ile desteklenen bir silika-destekli katalizördür, ham madde harmanlama süreci tercihen silikaya yönelik bir ham madde barındırması amacıyla hazırlanmaktadır. Silikaya yönelik ham madde özellikle sınırlı değildir. Spesifik olarak, silika sol kullanılabilmektedir. Toz silika, ya kısmen ya da tamamen silikaya yönelik ham madde olarak kullanılabilmektedir.

25

Mevcut yapılandırmada ham madde harmanlama adımı tercihen aşağıdaki adımları içermektedir:

30

(a) Mo, V, Sb ve bileşen Z barındıran bir sulu karışık süspansiyon hazırlanması;

(b) (a) adımıyla elde edilen sulu karışık süspansiyona silika sol ve hidrojen peroksit suyun eklenmesi;

(c) Nb, dikarboksilik asit ve hidrojen peroksit suyu barındıran bir sulu çözelti ve bir W-barındıran bileşik ile (b) adımıyla elde edilen çözeltinin karıştırılması; ve

35

(d) çözeltinin yaşlandırılması için (c) adımıyla elde edilen çözeltiye bir toz silika-barındıran

süspansiyon süsünü eklenmesi. Böylelikle, metal türlerinin metal değerlikleri, kalsinasyondan önceki aşamada daha düzgü olmaya eğilimlidir.

Bundan sonra, yukarıda bahsedilen ham madde harmanlama adımı bir Mo-barındıran bileşik, bir V-barındıran bileşik, bir Sb-barındıran bileşik, bir Nb-barındıran bileşik, bir W-barındıran bileşik, ve bir Z-barındıran bileşik barındıran bir silika destekli katalizörün bir ham madde harmanlama süsünü, bir çözücü ve/veya bir dispersiyon ortamı olarak su kullanılarak hazırlanmış bir örnek kullanılarak açıklanacaktır. Ham madde harmanlama adımı buna sınırlı değildir.

Mo-barındıran bileşik, V-barındıran bileşik, Sb-barındıran bileşik ve Z-barındıran bileşik suya eklenmektedir ve bir sulu karışım (A) hazırlanması için ısıtılmaktadır. Sulu karışım (A) hazırlanmış bir ısıtma sıcaklığı ve bir ısıtma süresi tercihen, ham madde bileşikleri yeterince çözündürülecek şekilde ayarlanmaktadır. Isıtma sıcaklığı tercihen 70°C ila 100°C'dir. Isıtma süresi tercihen 30 dakika ila 5 saattir. Bu sırada, sulu karışım (A) tercihen, ham maddelerin çözündürülmesi muhtemel olacak şekilde çalkalanmaktadır. Bu sırada, kabın iç kısmında bir hava atmosferi olabilmektedir. Bununla birlikte, elde edilen kompozit oksit katalizörünün oksidasyon sayısını ayarlanmasından, kabın iç kısmında bir nitrojen atmosferi olabilmektedir. Isıtmanın sonlandırılmasından sonra sulu karışım (A) durumu, bir sulu karışım (A') olarak belirlenmektedir. Sulu karışım (A') sıcaklığı tercihen 20°C veya daha fazlada ve 80°C veya daha azda ve daha tercihen 40°C veya daha fazlada ve 80°C'de veya daha azda tutulmaktadır. Sulu karışım (A') sıcaklığı 20°C veya daha fazladır ve bu yüzden sulu karışım (A') içinde çözündürülen metal türlerinin birikiminin oluşumu olasılığına eğilimlidir.

Sonrasında, silika sol, ısıtmanın sonlandırılmasından sonra sulu karışım (A) veya sulu karışım (A') eklenmektedir. Silika sol bir taşıyıcı olarak işlev görmektedir. Silika sol eklendiğinde bir sıcaklık tercihen 80°C veya daha azdır. Silika sol 80°C veya daha azda eklendiğinde, ham madde harmanlama süsünü jellenmesini ortadan kaldırmaya eğilimli olan, silika solün stabilitesi kıyasla daha yüksektir. Silika sol, daha sonra açıklanacak olan yaşlandırmanın başlaması durumunda yaşlandırmanın ortasında veya ham madde harmanlama süsünü kurutulmasından hemen önce eklenebilmektedir. Silika sol tercihen sulu karışım (A') eklenmektedir. Ayrıca, elde edilen kompozit oksidin oksidasyon sayısını ayarlanmasından, uygun miktarda hidrojen peroksit suyu tercihen gerekli olduğunda sulu karışım (A') eklenmektedir. Hidrojen peroksit suyu, sulu karışım (A') kendisine

eklenebilmektedir. Hidrojen peroksit suyu, sulu karışık sıvı (A') harmanlanmasından ortasında veya silika solün eklenmesinin sonrasında veya öncesinde eklenebilmektedir. Bu sırada, elde edilen kompozit oksit katalizörün oksidasyon sayısının doğru bir aralığa ayarlanması bakımından, eklenecek olan hidrojen peroksit suyunun miktarına gelince, H_2O_2/Sb (mol oranı) tercihen 0.01 ila 5, daha tercihen 0.5 ila 3 ve yine daha tercihen 1 ila 2.5'tir.

Hidrojen peroksit suyunun, sulu karışık sıvıya (A') eklenmesinden sonraki bir ısıtma sıcaklığı ve bir ısıtma süresi tercihen, hidrojen peroksit suyundan dolayı bir sıvı faz oksidasyon tepkimesi yeterince devam edecek şekilde ayarlanmaktadır. Isıtma sıcaklığı tercihen 30°C ila 70°C'dir. Isıtma süresi tercihen 5 dakika ila 4 saattir. Benzer şekilde, ısıtma sırasında çalkalamanın dönme sayısı hidrojen peroksit suyundan dolayı sıvı faz oksidasyon tepkimesinin devam etmesinin olasılığ olduğu uygun bir dönme sayısına ayarlanabilmektedir. Hidrojen peroksit suyundan dolayı sıvı faz oksidasyon tepkimesinin yeterince devam etmesine yol açılmasından, bir çalkalama durumu tercihen ısıtma sırasında tutulmaktadır. Bu şekilde hazırlanan sulu karışık sıvı (A'') olarak belirlenmektedir.

Sonrasında, Nb-barındıran bileşik ve dikarboksilik asit, bir karışık sıvı (B₀) hazırlanması için suda çalkalanırken ısıtılmaktadır. Dikarboksilik asidin örnekleri oksalik asidi $[(COOH)_2]$ kapsamaktadır. Sonrasında, hidrojen peroksit suyu tercihen, bir sulu karışık sıvı (C) hazırlanması için karışık sıvıya (B₀) eklenmektedir. Bu sırada, Nb-barındıran bileşiğin bir çözündürülmüş durumda stabilize edilmesi için Nb-barındıran bileşik ile bir kompleksin oluşturulması katalizör-oluşturan elementin oksidasyon/indirgeme durumunun düzgün bir şekilde ayarlanması ve elde edilen katalizörün katalizör performansının düzgün hale getirilmesi bakımından, H_2O_2/Nb (mol oranı) tercihen 0.5 ila 20 ve daha tercihen 1 ila 10'dur.

Sonrasında, hedeflenecek olan bir bileşime bağlı olarak, sulu karışık sıvı (A''), sulu karışık sıvı (C), W-barındıran bileşik ve toz silika uygun bir şekilde bir sulu karışık sıvı (D) elde edilmesi için karıştırılmaktadır. Sonrasında, elde edilen sulu karışık sıvı (D), bir ham madde harmanlama sıvısının elde edilmesi için yaşlandırma işlemine tabi tutulmaktadır. Elde edilen katalizörün katalizör performansının düzgün hale getirilmesi bakımından, burada kullanılan toz silika tercihen, sulu karışık sıvı (A''), sulu karışık sıvı (C) ve W-barındıran bileşiğin karıştırılması ile elde edilen çözeltiye eklenmektedir. Toz silika olduğu gibi eklenebilmektedir. Daha tercihen, toz silika tercihen, toz silikanın suda, yani bir tuz-silika barındıran süspansiyon sıvısında dağıldığı bir sıvı olarak eklenmektedir. Bu sırada toz silika-barındıran süspansiyon

sıcında toz silikanın konsantrasyonu tercihen kütlece %1 ila 30 ve daha tercihen kütlece %3 ila 20'dir. Toz silikanın konsantrasyon, kütlece %1 veya daha fazladır ve bu yüzden düşük viskozitede bir bulamacın yol açtığı katalizör partikülün bozulmuş şekli ortadan kaldırılabilmeye eğilimli olmaktadır. Katalizör partikülünde bir alçalmanın oluşumu veya benzeri aynı zamanda ortadan kaldırılabilmeye eğilimlidir. Toz silikanın konsantrasyon kütlece %30 veya daha azdır ve bu yüzden ham madde harmanlama sürecinin jellenmesi ve yüksek viskozitede ham madde harmanlama sürecinin yol açtığı bir boru hattının tıkanması önlenmeye eğilimlidir, bu durum bir kuru tozun kolaylıkla elde edilmesini mümkün kılmaktadır. Ayrıca, katalizör performansının aynı zamanda daha da geliştirilmeye eğilimlidir.

10

Sulu karışık sürecin (D) yaşlandırılması, sulu karışık sürecin (D) durgun halde bırakılması veya önceden belirlenmiş bir süre boyunca çalkalanması anlamına gelmektedir. Bir yaşlandırma süresi 90 dakika veya daha fazla ve 50 saat veya daha az ve daha tercihen 90 dakika veya daha fazla ve 6 saat veya daha azdır. Yaşlandırma süresi, yukarıda bahsedilen aralıktadır ve bu yüzden elde edilen kompozit oksidin katalizör performansının daha fazla geliştirilmeye eğilimli olan uygun bir oksidasyon/indirgeme durumunda (elektrik potansiyeli) sahip olan sulu karışık sürecin (D) oluşması muhtemeldir. Burada, kompozit oksit katalizörün, bir sprej kurutucu ile kurutulmasından sonra endüstriyel olarak üretilmesi durumunda, sprej kurutucunun işlem hızı genellikle hızı kontrollüdür. Tüm karışık sürecin sprej kurutulması, bir sulu karışık sürecin (D) bir kısmının spreyle kurutulmasından sonra sonlandırılana kadar gerekmektedir. Bu arada, sprej kurutma işlemine tabi tutulmayan sulu karışık sürecin yaşlandırılması devam etmektedir. Bu yüzden, yaşlandırma süresi, yalnızca daha sonra açıklanacak olan bir adımda (II) kurutmadan önce bir yaşlandırma süresini değil aynı zamanda kurutmanın başlamasından sonlanmasına kadar olan bir süreyi kapsamaktadır. V ve diğer metal türleri veya birden çok metalde dolayısıyla metal oksitlerin birikimi ve bir Mo bileşeninin kondenzasyonunun önlenmesi bakımından, bir yaşlandırma sıcaklığı tercihen 25°C veya daha fazladır. Nb ve hidrojen peroksit barındıran bir kompleksin hidrolizinin, tercih edilen bir formda bir bulamacın oluşturulması için aşırı derecede meydana gelmesinin önlenmesi bakımından, yaşlandırma sıcaklığı tercihen 65°C veya daha az, daha tercihen 25°C veya daha fazla ve 65°C veya daha az, ve yine daha tercihen 45°C veya daha fazla ve 60°C veya daha azdır. Katalizör ayrıca, yaşlandırma süresinin uzatılması, yaşlandırma sıcaklığının veya benzerinin yükseltilmesi veya uzatmanın ve yükseltmenin kombinasyon halinde gerçekleştirilmesi ile kalsinasyon sırasında indirgenmektedir. Mevcut buluş sahipleri titizlikle çalışmıştır ve sonuç olarak, bulamacın kalsinasyon ve oksidasyon-tepkimesi potansiyelinden sonra katalizörün indirgeme hızı belirli bir korelasyona sahiptir. Bulamacın oksidasyon-

35

indirgeme potansiyelinin artması durumunda, kalsinasyondan sonra katalizör oksidatif olmaktadır. Bulamacı oksidasyon-indirgeme potansiyelinin azalması halinde, kalsinasyondan sonra katalizör indirgeyici olmaktadır. Bu yüzden, bulamacı oksidasyon-indirgeme potansiyeli tercihen 400 ila 600 mV, daha tercihen 450 ila 550 mV, ve yine daha tercihen 470 ila 510 mV'dir.

[(II) Kurutma Adımı]

Mevcut yapılandırılan kurutma adımı, bir kuru tozun elde edilmesi için ham madde harmanlama sisteminin kurutulması adımıdır. Kurutma, bilinen bir yöntem ile gerçekleştirilebilmektedir. Örneğin, kurutma, spreyle kurutma veya kuruyana kadar buharlaşma ile gerçekleştirilebilmektedir. Bir akışkan-yatak tepkimesi yönteminin, buhar-faz katalitik oksidasyon tepkimesinde veya buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesinde benimsenmesi durumunda, bir küçük küre durumunda bir kuru toz tercihen, bir reaktörün içindeki akışkan tercihen bir duruma veya benzerine yol açılması bakımından elde edilmektedir ve bu yüzden spreyle kurutma tercihen benimsenmektedir. Sprey kurutma yönteminde atomizasyon, bir santrifüjleme yöntemi, bir iki-akışkan nozul yöntemi veya bir yüksek-basınçlı nozul yöntemi ile gerçekleştirilebilmektedir. Buhar veya bir elektrik ısıtıcı veya benzeri ile ısıtılan hava, kurutmaya yönelik olarak kullanılabilir.

Beslenecek olan ham madde harmanlama sisteminin bir hız ve santrifüjleme yöntemi sırasında bir püskürtücünün bir dönme sayısı veya benzeri tercihen, elde edilen kuru tozun büyüklüğü uygun olacak şekilde ayarlanabilmektedir. Kuru tozun ortalama partikül çapı tercihen 35 ila 75 µm, daha tercihen 40 ila 70 µm ve yine daha tercihen 45 ila 65 µm'dir. Ortalama partikül çapı kalsinasyondan sonra bile büyük oranda değişmemektedir.

[(III) Kalsinasyon Adımı]

Mevcut yapılandırılan kalsinasyon adımı, bir kalsine gövdenin elde edilmesi için bir kuru tozun kalsinasyon adımıdır. Örneğin, bir döner fırın (döner ocak), kuru tozun kalsinasyonuna yönelik bir kalsinasyon aparatı olarak kullanılabilir. Burada kuru tozun kalsine edilmesine yönelik bir kalsinasyon makinesinin şekli özellikle sınırlı değildir. Şekil, kesintisiz kalsinasyonunun yürütülebilmesi bakımından tercihen bir tüp şeklindedir (kalsinasyon tüpü) ve özellikle tercihen bir silindirik şeklindedir. Bir kalsinasyon sıcaklığının tercihen bir yükselen sıcaklık dağılımına veya benzerine ayarlanması olasılığı bakımından, bir ısıtma yöntemi

tercihen bir dş sına yöntemidir. Bir elektrik fırını uygun bir şekilde kullanılabilmektedir. Kalsinasyon tüpünün büyüklüğü ve kalitesi veya benzeri, bir kalsinasyon koşuluna veya bir üretim miktarına göre uygun bir şekilde seçilebilmektedir.

- 5 Kalsinasyon arzu edilir bir şekilde kalsinasyon adında iki adın halinde gerçekleştirilmektedir. Birinci kalsinasyonun, ilk kalsinasyon olarak belirlenmesi ve sonraki kalsinasyonun nihai kalsinasyon olarak belirlenmesi durumunda, ilk kalsinasyonun, 250 ila 400°C arasında sıcaklıkta gerçekleştirilmesi ve nihai kalsinasyonun, 450 ila 700°C aralığında sıcaklıkta gerçekleştirilmesi tercih edilmektedir. İlk kalsinasyon ve nihai kalsinasyon kesintisiz olarak gerçekleştirilebilmektedir. Nihai kalsinasyon, ilk kalsinasyonun bir defada tamamlanmasından sonra gerçekleştirilebilmektedir. İlk kalsinasyon ve nihai kalsinasyon sıralı olarak birkaç adıma ayrılabilir.

- Kalsinasyon, bir atmosferik ortamda veya bir hava dolaşımında gerçekleştirilebilmektedir. 15 Bununla birlikte, kompozit oksit katalizörün tercihen oksidasyon/indirgeme durumuna ayarlanması bakımından, kalsinasyonun en azından bir kısmı nitrojen gibi oksijenden büyük ölçüde bağımsız olan bir atılgaz dolaşırken gerçekleştirilmektedir. Kalsinasyonun, bir yığın yöntemi ile gerçekleştirilmesi durumunda, beslenecek olan atılgaz miktarı kompozit oksit katalizörün, tercihen oksidasyon/indirgeme durumuna ayarlanması bakımından kuru tozun 20 tercihen 1 kg'dan fazla 50 NL/sa, daha tercihen 50 ila 5000 NL/sa, ve yine daha tercihen 50 ila 3000 NL/sa'tir. Burada, "NL", standart sıcaklık veya basınç koşullar altında, yani 1 atmosferin bir basınç koşulunun altında 0 °C'de ölçülen bir gaz hacmi anlamına gelmektedir.

- Mevcut yapılandırılan kompozit oksit katalizörünü üretmeye yönelik yöntemde, ilk kalsine 25 gövdesinin indirgeme hızı tercihen %7 ila 15, daha tercihen %8 ila 12 ve yine daha tercihen %9 ila 12'dir. İndirgeme hızı bu aralığın dahilindedir ve bu yüzden, örneğin, verim ayrıca katalizör üretimi bakımından geliştirilmektedir. İndirgeme hızını arzu edilen bir aralığa kontrol edilmesine yönelik bir yöntemin spesifik örnekleri, ilk kalsinasyon sıcaklığının değiştirilmesine yönelik bir yöntem, oksijenin kalsinasyon sırasında bir atmosfere oksitlenmesi 30 gibi bir oksitleyici bileşen eklemeye yönelik bir yöntem, veya kalsinasyon sırasında bir atmosfere bir indirgeyici bileşenin eklenmesine yönelik bir yöntemi kapsamaktadır. Bunlar birleştirilebilmektedir.

[(IV) Çinko Maddenin Giderilmesi Adı]

Mevcut yapılandırılan çöktürme madde giderme adımı kalsine gövdesinin partikül yüzeyi üzerinde bulunan bir çöktürme maddeyi gidermeye yönelik bir adımdır. Birçok çöktürme madde, çöktürme yapan kristaller ve diğer katışklardır. Özellikle, birden çok metal barındıran kalsine gövdenin durumunda, kalsine gövdenin büyük bir kısmını oluşturan kristalinkinden farklı olan bir bileşime sahip olan oksit, kalsine gövdenin ana kısmından oksidin sıtın yapıldığı şekilde oluşturulabilmektedir. Bu tür çöktürme madde, azalan akmış bir faktörü olduğu için, çöktürme madde, katalizör formundan giderilmelidir. Çöktürme madde bir gram ölçüğünde giderildiğinde, aşağıdaki aparat kullanılabilmektedir. Başka bir deyişle, bir veya daha fazla deliğe sahip olan bir delikli plaka, bir taban kısmında bulunmaktadır ve bir kağıt filtresi bir üst kısımda bulunmaktadır. Kalsine gövdeler, dikey tüpün içine koyulmaktadır ve hava bir alt kısımdan dolaşmaktadır. Bu yüzden, bir hava akımı kalsine gövdelerin temasını teşvik edilmesi, böylelikle çöktürme maddelerinin giderilmesi için her bir delikten akmaktadır.

[Doymamış Nitrilin Üretilmesine yönelik Yöntem]

Mevcut yapılandırılmaya ait bir doymamış nitril üretmeye yönelik bir yöntem, propan veya izobütan bir buhar-faz katalitik oksidasyon tepkimesine veya bir buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesine tabi tutulmasıyla bir ilgili doymamış nitril üretmeye yönelik bir yöntemdir, ilgili doymamış nitril, propan ve izo-bütandan elde edilmektedir, mevcut yapılandırılmaya ait burada kompozit oksit katalitik kullanılmaktadır. Bundan sonra, akrilonitrilin üretilmesi için reaktörün bununla doldurulduğu mevcut yapılandırılan kompozit oksit katalizörü ile temas halinde getirildiği bir durumda bir buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesine propan, amonyak ve bir oksijen-barındıran gazı tabi tutulmasıyla yönelik bir yöntem açıklanacaktır.

(Ham Maddeler)

Ham maddeler olarak propan ve amonyak zorunlu olarak yüksek derecede saf değildir ancak hacimce %3 veya daha az katışkı örneğin etan, etilen, n-bütan ve izobütan barındıran propan ve hacimce yaklaşık %3 veya daha az katışkı örneğin su barındıran amonyak gibi endüstriyel sınıflar kullanılabilmektedir. Oksijen-barındıran gaz örnekleri, hava, oksijenle zenginleştirilmiş hava, saf oksijen, veya helyum, argon, karbon dioksit veya nitrojen gibi atık gaz ile seyreltilenler gibi bir gaz veya su buharını kapsamaktadır ancak bunlarla sınırlı değildir. Gazların bir endüstriyel ölçekte kullanılması durumunda, bunların arasında, hava tercihen basitlik açısından kullanılmaktadır.

(Tepkime Koşulu)

Propan veya izobütanın buhar-faz katalitik oksidasyonu özellikle sınırlı değildir. Spesifik olarak, buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesi, aşağıdaki koşullar altında gerçekleştirilebilmektedir. Propan veya izobütana tepkime için beslenecek olan oksijenin bir mol oranı tercihen 0.1 ila 6 ve daha tercihen 0.5 ila 4'tür. Bir tepkime sıcaklığı tercihen 300 ila 500°C ve daha da tercihen 350 ila 500°C'dir. Bir tepkime basıncı tercihen 5×10^4 ila 5×10^5 Pa ve daha da tercihen 1×10^5 ila 3×10^5 Pa'dır. Bir temas süresi, tercihen 0.1 ila 10 (sn·g/cm³) ve daha da tercihen 0.5 ila 5 (sn·g/cm³)'tür. Tepkime koşulları yukarıda bahsedilen aralıklarda bulunmaktadırlar ve böylelikle CO₂ ve CO oluşumu, daha da ortadan kaldırılabilmeye eğilimlidir ve doymamış nitril verimi daha da geliştirilebilmeye eğilimlidir.

Mevcut yapılandırılarda, temas süresi aşağıdaki formüller ile belirlenmektedir.

15

$$\text{Temas Süresi (sn·g/cm}^3\text{)} = (W/F) \times 273 / (273 + T)$$

Burada, W, F ve T aşağıdaki şekilde belirlenmektedir:

20

W = bir katalizörün dolu miktarı(g);

F = standart koşullar (0°C, 1.013×10^5 Pa) altında bir ham madde karışımının gazı akış hızı(N cm³/sn); ve

T = tepkime sıcaklığı(°C).

25

Mevcut yapılandırılarda ait kompozit oksit katalizör kullanılarak propan veya izobütanın buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesi özellikle sınırlı değildir. Spesifik olarak, buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesi, aşağıdaki koşullar altında gerçekleştirilebilmektedir. Propan veya izobütana tepkime için beslenecek olan oksijenin bir mol oranı tercihen 0.1 ila 6 ve daha tercihen 0.5 ila 4'tür. Propan veya izobütana tepkime için beslenecek olan amonyak bir mol oranı tercihen 0.3 ila 1.5 ve daha tercihen 0.7 ila 1.2'dir. Bir tepkime sıcaklığı tercihen 350 ila 500°C ve daha da tercihen 380 ila 470°C'dir. Bir tepkime basıncı tercihen 5×10^4 ila 5×10^5 Pa ve daha da tercihen 1×10^5 ila 3×10^5 Pa'dır. Bir temas süresi, tercihen 0.1 ila 10 (sn·g/cm³) ve daha da tercihen 0.5 ila 5 (sn·g/cm³)'tür. Tepkime koşulları yukarıda bahsedilen aralıklarda bulunmaktadırlar ve böylelikle CO₂ ve CO oluşumu, daha da ortadan kaldırılabilmeye eğilimlidir ve doymamış nitril verimi daha da geliştirilebilmeye eğilimlidir.

35

Sabit yatak yöntemi, akışkan yatak yöntemi ve bir hareketli yatak yöntemi gibi geleneksel yöntemler, buhar-faz katalitik oksidasyon tepkimesinde ve buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesinde bir tepkime yöntemi olarak benimsenebilmektedir. Bunların arasında, bir tepkime gerçekleştirilmesinin kolaylığından dolayı bir akışkan yatak reaktörü tercih edilmektedir. Buhar-faz katalitik amoksidasyon tepkimesi ya bir tek akışkan sistemi veya bir geri dönüşüm sistemi olabilmektedir.

Örnekler

Bundan sonra, mevcut yapılandırma, Örnekler ve Karşılaştırmalı Örneklerden hareketle daha ayrıntılı olarak açıklanacaktır.

[Akrilonitril Verimi (Doymamış Nitril)]

Örnekler ve Karşılaştırmalı Örneklerde, akrilonitril verimi, aşağıdaki tanımla takip edilmektedir. Oluşturulan akrilonitrilin molar sayısının bir kalibrasyon eğrisinin elde edilmesi için gaz kromatografisi (GC: Shimadzu Corporation tarafından imal edilmiştir, ürünün ismi: GC2014) ile bilinen bir konsantrasyona sahip olan akrilonitrilin bir gazı önceden analiz edilmesiyle ve sonrasında bir amoksidasyon tepkimesinde oluşturulan belirli miktarda gazı GC'ye enjekte edilmesi ile ölçülmüştür.

$$\text{Akrilonitril Verimi (\%)} = \left(\frac{\text{Oluşturulan Akrilonitrilin Molar Sayısı}}{\text{Beslenmiş Propanın Molar Sayısı}} \right) \times 100$$

[CO₂ ve CO Verimi]

Örnekler ve Karşılaştırmalı Örneklerde, CO₂ ve CO verimi, aşağıdaki tanımla takip edilmektedir. Oluşturulan CO₂ ve CO'nun molar sayısının bir kalibrasyon eğrisinin elde edilmesi için gaz kromatografisi (GC: Shimadzu Corporation tarafından imal edilmiştir, ürünün ismi: GC2014) ile bilinen bir konsantrasyona sahip olan CO₂ gazı ve bir CO'nun önceden analiz edilmesiyle ve sonrasında bir amoksidasyon tepkimesinde oluşturulan belirli miktarda gazı GC'ye enjekte edilmesi ile ölçülmüştür.

$$\text{CO}_2 \text{ veya CO Verimi (\%)} = \left(\frac{\text{Oluşturulan CO}_2 \text{ veya CO'nun Molar Sayısı}}{\text{Beslenmiş Propanın Molar Sayısı}} \right) \times 100$$

$$\frac{1}{\{(Beslenen\ Propan\ \text{veya}\ Izobutan\ Molar\ Sayı) \times (Propan\ \text{veya}\ Izobutan\ Karbon\ Sayı)\}} \times 100$$

[Örnek 1] **(Referans Örneği, buluşa göre değil)**

5

(Kuru Toz Preparasyonu)

Bir kuru toz (D₁) aşağıdaki şekilde üretilmiştir.

- 10 Bir sulu ham madde sıvısı (A₁) hazırlanması için, 1.771 g suya, 340.5 g amonyum heptamolibdat [(NH₄)₆Mo₇O₂₄·4H₂O], 46.9 g amonyum metavanadat [NH₄VO₃], 66.2 g diantimoni trioksit [Sb₂O₃], ve 4.2 g seryum nitrat [Ce(NO₃)₃·6H₂O] eklenmiştir ve çalkalanarak 1 saat boyunca 95°C'de ısıtılmıştır.
- 15 Bir sulu ham madde sıvısı (B₁) hazırlanması için, bir oksalik asidin/niyobyumun mol oranının 2.5 olduğu 257.6 g bir niyobyum karışık sıvısı (B₀) kütlece %30 oranında H₂O₂ barındıran 40 g hidrojen peroksit eklenmiştir ve çalkalanarak 10 dakika boyunca oda sıcaklığında karıştırılmıştır.
- 20 Elde edilen ham madde sıvısı (A₁) 70°C'ye soğutulmasından sonra, kütlece %34.0 SiO₂ barındıran 564.7 g silika sol buna eklenmiştir ve kütlece %30 H₂O₂ barındıran 80 g hidrojen peroksit su ayrıca buna eklenmiştir. Sonrasında sonuçta oluşan karışım 55°C'de 30 dakika boyunca kesintisiz olarak çalkalanmıştır. Sonrasında, sulu ham madde sıvısı (B₁), 26.5 g bir amonyum metatungstat sulu çözeltisi (konsantrasyon: %50) ve 1728 g suda 192 g toz
- 25 silikanın dağılması ile elde edilen bir dispersiyon sıvı karışık olarak, sulu ham madde sıvısı (A₁) eklenmiştir ve sonuçta oluşan karışım sonrasında, bir ham madde harmanlama sıvısı olarak bir bulamaç sulu karışık sıvısı (C₁) elde edilmesi için 2.5 saat boyunca 50°C'de çalkalanmıştır ve yaşılandırılmıştır.
- 30 Elde edilen sulu karışık sıvı (C₁), bir santrifüjlü sprey kurutucuya beslenmiştir (bir kurutma ısı kaynağı havadır ve bu, bundan sonra uygulanacaktır) ve bir küçük küre durumunda bir kuru tozun (D₁) elde edilmesi için kurutulmuştur. Kurutucunun bir girişinde ve bir çıkışındaki sıcaklıklar sırasıyla 210°C ve 120°C'dir.

35 (Sınıflandırma Çalışması)

Elde edilen kuru toz (D_1), bir sınıflandırma malzeme olarak bir kuru tozun (E_1) elde edilmesi için 25 µm'lik bir açığa sahip olan bir elek kullanılarak sınıflandırılır. Elde edilen tozda (E_1), 25 µm veya daha az olan partiküllerin içerik hızı, kütlece %0.2'den daha azdır ve ortalama partikül çapı 54 µm idi. Partiküllerin içerik hızı ve ortalama partikül çapı BECKMAN COULTER tarafından imal edilen LS230 (marka ismi) ile ölçülmüştür (bu, bundan sonra da geçerli olacaktır).

(Kuru tozun (E_1) Kalsinasyonu)

Elde edilen kuru toz (E_1), 80 g/sa'lik beslenmiş miktarda, 3 inç bir döner fırın çapına (iç çap; bu, bundan sonra da geçerli olacaktır) ve bir 89 cm'lik uzunluğa sahip olan bir kesintisiz SUS silindirik kalsinasyon tüpüne beslenmiştir. 1.5 NL/dk'lık bir nitrojen, kalsinasyon tüpünde sırasıyla kuru tozun besleme yönüne zıttı yönde (başka bir deyişle, karşıt yönde) bu bundan sonra da geçerli olacaktır ve aynı yönde (başka bir deyişle, eş zamanlı olarak) bu, bundan sonra da geçerli olacaktır aktır ve toplam akış hızı 3.0 NL/dk'ya ayarlanmıştır. Fırın sıcaklığı kalsinasyon tüpü 4 dönüş/dk hızında döndürülürken kalsinasyon tüpü, maksimum kalsinasyon sıcaklığı olarak 360°C'de 4 saatten fazla artıracak şekilde ayarlanmıştır ve sıcaklık ilk kalsinasyonun gerçekleştirilmesi için, 1 saat boyunca 360°C'de tutulabilmektedir. Kalsinasyon tüpünün çıkışında toplanan az miktardaki ilk kalsine gövde örneklendirilmiştir ve bir nitrojen atmosferinde 400°C'ye indirilmiştir. İndirgeme hızı sonrasında ölçülmüştür. İndirgeme hızı %10.2 idi. Toplanan ilk kalsine gövde, 60 g/sa'lik beslenmiş miktarda, 3 inçlik çapta ve 89 cm'lik uzunlukta olan bir döner fırın sahip olan kesintisiz SUS silindirik kalsinasyon tüpüne beslenmiştir. 1.1 NL/dk'lık bir nitrojen gaz, kalsinasyon tüpünde sırasıyla kuru tozun besleme yönüne zıttı bir yönde ve aynı yönde aktır ve toplam akış hızı 2.2 NL/dk'ya ayarlanmıştır. Fırın sıcaklığı nihai kalsinasyonun gerçekleştirilmesi için sıcaklık 2 saat boyunca 680°C'ye yükseltilebilecek, 2 saat boyunca 680°C'de tutulabilecek ve sonrasında 8 saat boyunca 600°C'ye düşürülebilecek şekilde ayarlanmıştır.

(Çıkışta Maddenin Giderilmesi)

50 g'lık kalsine gövde (F_1); her birinin **0.397 mm'lik (1/64 inç)** bir çapa sahip olduğu üç deliğe sahip olan bir delikli diskin, **taban kısmında bulunduğu** ve bir kağıt filtrenin bir üst kısmında bulunduğu bir dikey tüpün (iç çap: 41.6 mm, uzunluk: 70 cm) içine koyulmuştur. Sonrasında hava, kalsine gövdelerin temasını teşvik edilmesi için, her bir delik aracılığıyla

5

10

15

25

21

Örnek 4*	5.3	0.85	0.188	0.220	0.103	0.03	Ce0.005	52.6	54.9	24.5
Örnek 5	6.7	0.68	0.150	0.219	0.095	0.03	Ce0.005	53.3	54.6	24.8
Örnek 6	5.1	0.84	0.195	0.233	0.109	0.03	Ce0.006	52.3	55.2	24.2
Örnek 7	6.7	0.79	0.150	0.190	0.102	0.03	Ce0.006	51.9	55.0	24.4
Örnek 8	8.3	0.65	0.120	0.185	0.105	0.03	Ce0.006	52.0	53.6	25.8
Örnek 9*	8.5	0.84	0.118	0.140	0.103	0.03	Ce0.006	49.3	53.5	25.9
Karşılaştırmal Örnek 1	5.9	1.06	0.170	0.160	0.100	0.03	Ce0.005	52.7	51.5	28.3
Karşılaştırmal Örnek 2	6.7	0.56	0.150	0.270	0.090	0.03	Ce0.005	55.0	51.8	28.0
Karşılaştırmal Örnek 3	4.3	0.88	0.230	0.260	0.092	0.03	Ce0.005	51.0	52.3	28.9
Karşılaştırmal Örnek 4	11.1	0.90	0.090	0.100	0.090	0.03	Ce0.006	52.0	48.1	32.1
Karşılaştırmal Örnek 5	6.7	1.03	0.150	0.145	0.090	0.03	Ce0.005	49.6	52.4	27.4
Karşılaştırmal Örnek 6	6.7	0.58	0.150	0.260	0.102	0.03	Ce0.005	52.1	52.0	27.8
Karşılaştırmal Örnek 7	5.0	0.65	0.200	0.310	0.105	0.03	Ce0.007	53.0	53.0	27.1
Karşılaştırmal Örnek 8	11.1	0.78	0.090	0.115	0.090	0.03	Ce0.008	54.0	50.0	30.9

*buluşa göre değil

Örneklerin bulgularından, mevcut yapılandırılan katalizörlerinin, yüksek bir AN verimine ve düşük bir CO₂ ve CO verimine sahip olduğu gösterilmiştir. Özellikle, CO₂ ve CO, Karşılaştırmal Örneklerle kıyasla büyük oranda azaltılmaktadır bu yüzden yalnızca akrilonitrilin değil aynı zamanda asetonitril veya hidrosiyamik asit gibi faydalı bir yan ürünün ayrışımından ortadan kaldırılabilmesi varsayabilmektedir

Endüstriyel Uygulanabilirlik

- 10 Mevcut buluşun kompozit oksit katalizör, CO₂ ve CO oluşumunu ortadan kaldırabilen ve bir ilgili doymamış nitrilin üretilmesi için propan veya izobütan bir buhar faz katalitik amoksidasyon tepkimesine tabi tutulması yönelik bir yöntemde bir doymamış nitril verimini geliştirebilen bir katalizör olarak uygun bir şekilde kullanılabilmektedir.