[19] المملكة العربية السعودية SA
مدينة الملك عبدالعزيز للعلوم والتقنية

[11] رقم البراءة: ٢٠٧٠
[45] تاريخ المنح: ١٤٢٩/٠٨/١٨هـ
الموافق: ٢٠٠٨/٠٨/١٩م

[12] براءة اختراع

[72] اسم المخترع: هيدنورى هيناجو، مامورو واتاناب
[73] مالك البراءة: أساهى كاساى كابوشيكى كايشا
عنوانه: ٢-٦، دوجيماهاما ١ تشوم، كيتا. كو، أوساكا-شى، أوساكا ٥٣٠-٨٢٠٥، اليابان
جنسيته: يابانية
[74] الوكيل: أحمد نجدت بازارباشي

[21] رقم الطلب: ٠٢٢٢٠٦٢٦
[22] تاريخ الإيداع: ١٤٢٢/١٠/٢٥ هـ
الموافق: ٢٠٠٢/٠١/٠٩ م

[51] التصنيف الدولي (IPC[8]): B01J 23/22
[56] المراجع:
براءة أمريكية ٥٧٥٠٧٦٠ ١٩٩٨/٠٥/١٢م
براءة أمريكية ٦٠٦٠٤٢٢ ٢٠٠٠/٠٥/٠٩م

اسم الفاحص: متعب بن شائع الدوسري

[54] اسم الاختراع: حفاز أكسيدي لعملية الأكسدة أو الأكسدة الأمونية

Oxide catalyst for oxidation or ammoxidation

[57] الملخص: يتم الكشف عن طريقة لإنتاج عامل حفاز أكسيدي oxide catalyst للاستعمال في الأكسدة الحفزية catalytic oxidation أو الأكسدة الأمونية catalytic ammoxidation للبروبان propane أو الأيزوبيوتان isobutane في الحالة الغازية ، والتي تتضمن على تكوين يمثل بالصيغة Mo1VaSbbNbcZdOn حيث أن Z هي عنصر واحد على الأقل يتم اختياره من مجموعة مكونة من التنجستن tungsten ، الكروم chromium ، التيتانيوم titanium، الألمونيوم aluminum ، التنتالوم tantalum ، الزيركونيوم zirconium ، الهفنيوم hafnium ، المنجنيز manganese ، الحديد iron ، الروثينيوم ruthenium ، الكوبالت cobalt ، الروديوم rhodium ، النيكل nickel ، البالاديوم palladium ، البلاتين platinum ، الزنك zinc ، البورون boron ، الأنديوم indium ، الجرمانيوم germanium، القصدير tin ، الرصاص lead ، البيزموت bismuth ، الأيتريوم yttrium ، الجاليوم gallium ، العناصر الأرضية النادرة ؛ و a و b و c و d و n على التتابع تمثل النسب الذرية لـ V ، Sb ، Nb ، Z ، و O نسبة إلى Mo حيث أن $0.1 \le a < 0.4, 0.1 < b \le 0.4, 0.01 \le c \le 0.3, 0 \le d \le 1$ شريطة أن a>b و n عبارة عن رقم محدد وثابت مع متطلبات التكافؤ للعناصر الأخرى الموجودة. أيضاً يكشف عن عملية لإنتاج حمض كربوكسيلي carboxylic acid غير مشبع أو نيتريل nitrile غير مشبع عن طريق استعمال العامل الحفاز الأكسيدي المذكور مسبقاً.

عدد عناصر الحماية (٢٠) ، عدد الأشكال (٢)

حفاز أكسيدي لعملية الأكسدة أو الأكسدة الأمونية

Oxide catalyst for oxidation or ammoxidation

الوصف الكامل

خلفية الاختراع:

يتعلق الاختراع الحالي بعامل حفاز أكسيدي للاستخدام في عملية التأكسد الحفاز (catalytic oxidation) أو التأكسد الأموني للبروبان (ammoxidation of propane) أو الأيزوبيوتان (isobutane) في الحالة الغازية (gaseous phase) . الأكثر تعييناً ، يتعلق الاختراع الحالي بعملية إنتاج عامل حفاز أوكسيدي للاستعمال في الأكسدة الحفزية (catalytic oxidation) أو الأكسدة الأمونية الحفزية للبروبان (ammoxidation of propane) أو الأيزوبيوتان في الحالة الغازية ، والتي تشتمل على ، بنسبة محدده ، الموليبدينيوم molybdenum (Mo) ، الفناديوم vanadium (V) ، الأنتيمون antimony (Sb) والنيوبيوم niobium (Nb) ، والأكسجين oxygen (O) وعنصر واحد على الأقل Z يتم اختياره من مجموعة مكونة من التنجستن (tungsten) ، الكروم (chromium) ، التيتانيوم (titanium) ، الألمنيوم (aluminum) ، التنتالوم (tantalum) ، الزيركونيوم (zirconium) ، الهافنيوم (hafnium) ، المنجنيز (manganese) ، الحديد (iron) ، الروتينيوم (ruthenium) ، الكوبالت (cobalt) ، الروديوم (rhodium) ، النيكل (nickel) ، البالاديوم (palladium) ، البلاتين (platinum) ، الزنك (zinc) ، البورون (boron) ، الأنديوم (indium) ، الجرمانيوم (germanium) ، القصدير (tin) ، الرصاص (lead) ، البزموت (bismuth) ، الأيتيريوم (yttrium) ، الجاليوم (gallium) ، العناصر الأرضية النادرة (rare earth elements) والفلزات القلوية الأرضية (alkaline earth metals) ، حيث تكون النسبة الذرية b لـ Sb/Mo أكبر من النسبة الذرية a لـ V/Mo ، ولن تزيد النسبة الذرية b لـ Sb/Mo عن ٠.٤ . عن طريق استعمال عامل حفاز أكسيدي (oxide catalyst) وفقاً الحالة للاختراع الحالي في الأكسدة (oxidation) أو الأكسدة الأمونية (ammoxidation) للبروبان (propane) أو الأيزوبيوتان في الحالة الغازية ، ويمكن إنتاج ميث (أكريلونيتريل) acrylonitrile (meth) أو حمض ميث (أكريليك) acrylic acid (meth) بانتقائية عالية ويمكن

المحافظة على تلك الإنتقائية العالية لفترة طويلة ، بحيث يمكن إنتاج ميث (أكريلونيتريل) (meth) acrylonitrile أو حمض ميث (أكريلونيتريل) بفعالية لفترة طويلة.

أيضاً يختص الاختراع الحالي بعملية لإنتاج حمض كربوكسيلي (carboxylic acid) غير مشبع أو نيتريل (nitrile) غير مشبع في وجود العامل الحفاز الأكسيدي المحصل مسبقاً.

النصوص السابقة

تقليدياً ، إنه من المعروف جيداً طريقة إنتاج (الميث)أكريلونيتريل بواسطة التأكسد الأموني للبروبيلين (ammoxidation propylene) أو الأيزوبيوتان ، وطريقة إنتاج (الميث) حمض الأكريليك (meth) acrylic بتأكسد البروبيلين propylene أو الأيزوبيوتان . حديثاً ، كبدائل لمثل هذه العمليات للتأكسد (oxidation) أو التأكسد الأموني ammoxidation للبروبيلين أو الأيزوبيوتيلين (isobutylene) ، وجهت الأنظار لطريقة إنتاج (الميث) أكريلونيتريل بالتأكسد الأموني الحفاز (catalytic ammoxidation) أو التأكسد الحفزي في الحالة الغازية . حيث يتم استعمال الأيزوبيوتان كمادة خام بدلاً من البروبيلين أو الأيزوبيوتيلين . واقترحت كعوامل حفازة تستعمل في تلك الطرق.

من العوامل الحفازة المقترحة ، وبخاصة ، عامل حفاز أكسيدي مشتمل على Mo-V-Sb-Nb قد لفتت الانتباه ، حيث أن مثل هذا العامل الحفاز الأكسيدي له المميزات بحيث يشتمل العامل الحفاز على عناصر ذات تطاير قليل نسبياً ، ويمكن استعمال العامل الحفاز للأكسدة الأمونية الحفزية أو الأكسدة الحفزية (catalytic oxidation) في الحالة الغازية عند درجة حرارة تفاعل منخفضة ، ويمكن إنتاج (ميث) أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile أو حمض (ميث) أكريليك (meth) acrylic acid بانتقائية عالية نسبياً وإنتاجية عالية نسبياً.

نوقشت الطرق لإنتاج (ميث) أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile في وجود العامل الحفاز الأكسيدي بما فيها Mo-V-Sb-Nb (فيما بعد يشار إليها كعامل حفاز أكسيدي " Mo-V-Sb-Nb" في العديد من وثائق البراءات ، على سبيل المثال مواصفات طلبات البراءات اليابانية المعلقة الغير مفحوصة أرقام ٩-١٥٧٢٤١ (المطابقة للبراءة الأمريكية رقم ٥٧٥٠٧٦٠ والأوروبية رقم ٠٧٦٧١٦٤ أ١) ، ١٠ - ٢٨٨٦٢ ، ١٠ - ٨١٦٦٠ ، ١٠ -

٣١٠٥٣٩ ، ١٠ – ٣٣٠٣٤٣ ، ١١ – ٤٢٤٣٤ ، ١١ – ٤٣٣١٤ ، ١١– ٥٧٤٧٩ ، ١١ – ٢٦٣٧٤٥ ، ٢٠٠٠ – ١٤٣٢٤٤ ، WO ٠٠١٢٢٠٩ أ١ (المناظرة للطلب الألماني رقم ١٩٩٨٣٢٥ تي) ، والبراءة الأمريكية رقم ٦٠٤٣١٨٥.

أيضاً نوقشت طرق إنتاج حمض (ميث) أكريليك في وجود عامل حفاز أكسيدي Mo-V-Sb-Nb في وثائق براءات متعددة ، على سبيل المثال مواصفات طلبات البراءات اليابانية المعلقة والغير مختبرة أرقام ٩- ٣١٦٠٢٣ ، ١٠ – ١١٨٤٩١ ، ١٠ – ١٢٠٦١٧ (المناظرة للبراءات الأمريكية أرقام ٥٩٩٤٥٨٠ و ٦٠٦٠٤٢٢) ، ١٠ – ١٣٧٥٨٥ ، ١١ – ٢٨٥٦٣٧ ، ١١ – ٣٤٣٢٦١ ، ٢٠٠٠ – ٥١٦٩٣ ، ١١ – ٣٤٣٢٦٢ ، ١٠ – ٣٦٣١١ ، ١٠ – ٤٥٦٦٤ ، ٩ – ٢٧٨٦٨٠ و ١٠ – ١٢٨١١٢.

يشتمل أي من تلك العوامل الحفازة الأكسيدية Mo-V-Sb-Nb oxide catalysts المسبقة الذكر ، والتي تستعمل لإنتاج (ميث) أكريلونيتريل أو حمض (ميث) أكريلونيتريل (meth) acrylic acid على أكسيد oxide ممثل بالصيغة (أ) التالية:

$$Mo_1V_pSb_qNb_rO_m \qquad \text{أ}$$

حيث أن p ، q ، r و m تتابعياً ، هي النسب الذرية لـ Sb ، Nb ، و O ونسبة إلى Mo.

يمكن تصنيف العوامل الحفازة الأكسيدية Mo-V-Sb-Nb oxide catalysts المألوفة المسبقة الذكر إلى المجموعتين التاليتين:-

١) عوامل حفازة تكون فيها النسبة الذرية V/Mo تساوي أو أكبر من النسبة الذرية Sb/Mo ، أي أن p و q في الصيغة أ المسبقة تحقق العلاقة التالية : p أكبر من أو تساوي q ؛ و

٢) العوامل الحفازة التي فيها النسبة الذرية Sb/Mo تساوي أو أكبر من ٠,٥ أي أن q في الصيغة السابقة أ تحقق العلاقة التالية : q أكبر من أو تساوي ٠,٥.

عندما يتم استعمال العوامل الحفازة الأكسيدية Mo-V-Sb-Nb العادية المذكورة مسبقاً ، فإن الميث أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile أو حمض ميث أكريليك (meth) acrylic acid ينتج أحياناً بانتقائية عالية نسبياً (فيما بعد ، يشار إلى الميث أكريلونيتريل

أو حمض ميث أكريليك (meth) acrylic acid بالمنتج المتطلب ") . على أية حـــال ، فإن انتقائية المنتج المتطلب والتي تتحقق عن طـــريق تلك العوامل الحفازة المألوفة ، وتعتبر غير مرضـــية.

من العوامل الحفازة الأكسيدية Mo-V-Sb-Nb oxide catalysts من المجمـــوعة ١ السابقة ، فإن العامل الحفـــازة الأكسيدية المؤهلة لتحقيق انتقائية عاليـــة نسبياً للمنتج المتطلب تبـــدي ثبات منخفض على نحو غير مميز . تحديداً ، وبخاصة عندما يتم إجـــراء الأكســـدة الحفزية أو الأكسدة الأمونية الحفـــزية في الحالـــة الغازيـــة وفي وجـــود كـــل من العوامـــل الحفازة الأكســـيدية (oxide catalysts) في نمط مدور باستعمال مخلوط تغذية غازية ذا ضغط عـــالي جزئياً من البروبان ، وتقل الانتقائية للمنتج المتطلب عبر طول الفترة الزمنية.

في محاولة لتحسين ثباتية العوامل الحفازة الأكسيدية Mo-V-Sb-Nb oxide catalysts من المجموعة ١ السابقة وبحيث يحافظ على الانتقائية للمنتج المتطلب بمستوى عـــالي ، الطريقتان التاليتان قـــد تم معالجتهما.

- الطريقة الأولى والتي فيها باســـتعمال مفاعل به نطـــاق يكـــون فيه مخلوط غـــازي ذا تركيز أعلى من الأكسجين عما لمخلوط التفاعل الغازي الناتـــج وتتصل مع العامل الحفـــاز الأكسيدي يؤكسد العامل الحفـــاز الأكسيدي باستمرارية لكي يتم توليـــد العامل الحفـــاز الأكسيدي (أنظر مواصفة طلب البراءة اليابانية المعلقة الغير مختبـــرة رقم ١١- ٢٦٣٧٤٥) ؛ و

- الطـــريقة الثانية والتي فيها ينتج عامل حفاز أكســـيدي Mo-V-Sb-Nb oxide catalyst من المجمـــوعة ١ السابقة عن طـــريق عملية متضمنة على تحضير مخلـــوط سائل لمادة خـــام لأجل العامل الحفاز ، ثم تجفيف بالرش (الترذيذ) والكلسنة (calcination) ويخلط مع محلـــول مـــائي محتوي على Mo و Co لكي يحصل على مخلوط مائي ، ويجفف المخلـــوط المـــائي المحصل بالترذيذ ويكلسن وبذا يحصل على عامل حفـــاز مطـــور محتوي على كميـــة كبيـــرة من أكسيد مركب Mo-Co (أنظر مواصـــفة طلب البراءة اليابانية المعلقة والغيـــر مختبرة رقم ١١- ٥٧٤٧٩).

من الطريقتين السابقتين ، فإن الطـــريقة الأولى تعتبر غيـــر مميزة بسبب أن العمليـــة للأكسدة الأمونية الحفـــزية أو الأكسدة الحفزية (catalytic oxidation) في الحـــالة الغازية

(gaseous phase) تعتبر حتماً بطيئة . ومن ناحية أخـرى ، فإن الطـريقة الثانية كذلك تعتبـر غير مميزة ليس فقط بسبب أن العملية لإنتـاج العامل الحفـاز الأكسيدي تصبح بطيئة جداً ، ولكن أيضاً أنه حتى عندما تستعمل السليكا silica لزيادة الإجهاد للعامل الحفاز . بما أن العامـل الحفاز الأكسيدي (oxide catalyst) المنتج في الطريقة الثانيـة يحتوي على كمية كبيـرة من أكسيد مركب من Mo-Co ، لذا فإنه يصعب جعل العامـل الحفاز الأكسيدي يحتـوي على كميـة مقبولة من السليكا المتطلبة أجل زيادة مقبولة لإجهاد العامـل الحفاز الأكسيدي . لذلك ، وبخاصة ، فإنه يصعب تطبيق الطـريقة الثانية لإنتاج العامـل الحفاز الأكسـيدي المستعمل لتفاعل طبقة مائعة ومن ثم يتطلب احتوائه على إجهـاد عالي.

فيما يختص بالعوامل الحفـازة الأكسيدية Mo-V-Sb-Nb oxide catalysts من المجمـوعة ٢ السابقة ، فإن تلك العوامـل الحفازة لها عيب في أن انتقائيته للمنتج المتطلب تكـون قليلة.

مما سبق ، فإنه ليبدو بأنه ، عن طـريق العوامل الحفـازة الأكسيدية Mo-V-Sb-Nb المألوفـة لأجل الأكسدة الأمونية الحفـزية أو الأكسـدة الحفزية ، فإنه يصعب الحصـول على إنتاج ثابت من المركب المتطلب ذا انتقائية عاليـة ولفترة طويلة.

<u>الوصف العام للاختراع</u>

في هذه الحـالة ، فإن الاختـراع الحـالي قد قام بدراسات مكثفة وشـديدة تجاه تطـوير عامل حفاز أكسـيدي Mo-V-Sb-Nb oxide catalyst والذي يمكن استعماله لإنتـاج ثابت للميث أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile أو حمض ميث أكريليك (meth) acrylic ذات انتقائية عاليـة لفترة طويلة . كنتيجة لذلك ، فقد وجد على نحو مدهش بأنه ، عن طـريق استعمال عامـل حفاز أكسيدي Mo-V-Sb-Nb ذا تكـوين مناسب في الأكسـدة أو الأكسدة الأمونية (ammoxidation) للبروبان (propane) أو الأيزوبيوتـان في الحالة الغازية ، (ميث) أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile أو حمض (ميث) أكريليك يمكن إنتاجها بانتقائية عاليـة ويمكنت المحافظـة على تلك الانتقائية العاليـة ولفترة طـويلة . يشتمل العامل الحفـاز الأكسيدي Mo-V-Sb-Nb ذا التكـوين المحدد ، بنسبة محـددة ، على الموليبدنيوم molybdenum (Mo) ، الفناديوم vanadium (V) ، الأنتيمون antimony ، النيوبيوم niobium (Nb) ، الأكسـجين وعنصر واحد على الأقل Z منتقي من مجموعة مكـونة من التنجستن

tungsten ، الكروم chromium ، التيتانيوم titanium ، الألمنيوم ، التنتالوم tantalum ، الزيركونيوم zirconium ، الهافنيوم hafnium ، المنجنيز manganese ، الحديد iron ، الروتينيوم ruthenium ، الكوبالت cobalt ، الروديوم rhodium ، النيكل nickel ، البالاديوم palladium ، البلاتين platinum ، الزنك zinc ، البورون boron ، الأنديوم indium ، الجرمانيوم germanium ، القصدير tin ، الرصاص lead ، البيزموت bismuth ، الأيتيريوم ، الجاليوم gallium ، العناصر الأرضية النادرة rare earth elements والفلزات القلوية الأرضيةalkaline earth metals ، حيث تكون النسبة الذرية Sb/Mo (b) أكبر من النسبة الذرية (a) لـ V/Mo ، ولن تزيد النسبة الذرية Sb/Mo عن ٠,٤ . بالاعتماد على تلك البيانات الجديدة ، فقد اكتمل الاختراع الحالي.

طبقاً ، من الهدف الأولى للاختراع توفير عامل حفاز أكسيدي Mo-V-Sb-Nb oxide catalysts يتم استعماله بتميز لإنتاج ثابت لمركب (ميث)أكريلونيتريل أو حمض (ميث) أكريليك ذات انتقائية عالية ولفترة طويلة.

الهدف الآخر للاختراع الحالي هو توفير عملية لإنتاج (ميث) أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile والذي يشتمل على إجراء عملية الأكسدة في وجود العامل الأكسيدي المسبق الذكر ، وعملية لإنتاج حمض (ميث) أكريليك ، والتي تشتمل على أجزاء الأكسدة في وجود العامل الحفاز المسبق الذكر . وسوف يتم توضيح الأهداف الحالية وغيرها ، والسمات والمميزات للاختراع الحالي من الوصف التفصيلي التالي وعناصر الحماية الملحقة والمأخوذة في اتصال مع الرسومات المصاحبة.

<u>شرح مختصر للرسم في الرسومات :</u>

- شكل رقم ١ يمثل نمط حيود أشعة أكس X-ray لعامل حفاز أكسيدي محصل من المثال رقم ١ ؛ و
- شكل رقم ٢ يمثل منظر مكبر لنمط حيود أشعة أكس X-ray للمثال رقم ١ مبيناً المدى من ٢٥ إلى ٣٠ درجة بما يعرف بزاوية الحيود (2θ) لكي تفسر كيفية الحصول على القمة لنسبة الشدة.

وصف الأرقام المرجعية

A_1 : الجـزء العلـوي من القمـة الملاحظـة عند زاوية حيود (2θ) تسـاوي ٢٧,١ ± ٠,٣ درجة في نمط حيـود أشعة أكس لعامل حفاز أكسيدي oxide catalyst محصـل باستعمال Cukα كمصدر لأشعة أكس ؛

A_2 : الجزء العلوي من القمة المحصلة بزاوية حيود (٢ سيتا 2θ) تسـاوي ٢٨,١ ± ٠,٣ درجة في نمط حيـود أشعة أكس لعامل حفاز أكسيدي محصـل باستعمال Cukα كمصدر لأشعة أكس ؛

B_1 النقطـة التي يبـدي الخط المنحنـي لنمط حـيود أشـعة أكس أدنـى قيمـة شـدة (minimum intensity value) بزاوية حيـود (2θ) تسـاوي ٢٦,٤ ± ٠,٣ درجة ؛

B_2 النقطـة التي يبـدي الخط المنحني لنمط حيـود أشعة أكـس أدنى قيمة شـدة بزاوية حيود (2θ) تسـاوي ٢٧,٦ ± ٠,٣ درجة ؛

B_3 النقطـة التي يبـدي الخـط المنحنـي لنمط حيـود أشعة أكس أدنى قيمة شـدة بزاوية حيود (2θ) تسـاوي ٢٨,٨ ± ٠,٣ درجة ؛

C_1 النقطة التي عندها يرسم الخـط المسـتقيم من الجزء العلـوي للقمـة A_1 رأسـياً إلى المحـور ٢ سيتا المتقاطعة مع الخـط المستقيم المتصل بالنقطتين B_1 و B_2 ؛ و

C_2 النقطة التي عنـدها يرسم الخـط المسـتقيم من الجـزء العلـوي للقمة A_2 رأسـياً إلى المحـور ٢ سيتا المتقاطعة مع الخـط المستقيم المتصل بالنقطتين B_2 و B_3 ؛ و

<u>الوصف التفصيلي:</u>

وفقاً للاختـراع الحالي ، أنه يمد بطـريقة لإنتاج عامل حفاز أوكسيدي للاستخدام في التأكسد الحفازي (catalytic oxidation) أو التأكسد الأموني (ammoxidation) للبروبـان (propane) أو الأيزوبيوتـان (isobutane) في الحـالة الغازية ، والتي تتضمن على تكـوين يمثل بالصيغة التالية (I):

$$Mo_1V_aSb_bNb_cZ_dO_n$$

حيث :

Z هو عنصـر واحد على الأقل مختار من مجمـوعة مكـونة من التنجستين tungsten ، الكروميوم chromium ، التيتانيوم titanium ، الألومنيوم aluminum ، التنتاليـوم tantalum ، الزركونيـوم zirconium ، الهافنيـوم hafnium ، المنجنيـز manganese ، الحـديد iron ،

الروتينيوم ruthenium ، الكوبالت cobalt ، الروديوم rhodium ، النيكل nickel ، البلاديوم ، البلاتين platinum ، الزنك zinc ، البورون boron ، الجاليـوم gallium ، الأنديوم indium ، الجرمانيوم germanium ، القصدير tin ، الرصاص lead ، البزموث bismuth ، اليتريوم yttrium ، الجاليـوم gallium ، العناصـر الأرضية النادرة rare earth elements والفلزات الأرضية القلـوية alkaline earth metals.

و a ، b ، c ، d ، n هي بالتتابع ، نسبة ذرية للفانديوم vanadium (V) ، الأنتيمـون antimony (Sb) ، النيوبيـوم niobium (Nb) ، Z والأكسجين (oxygen) ، بالنسبة للموليبدنيوم molybdenum (Mo)،

حيث :

$$0.1 \leqq a < 0.4,$$

$$0.1 < b \leqq 0.4,$$

$$0.01 \leqq c \leqq 0.3,$$

$$0 \leqq d \leqq 1,$$

شريطة أن a أكبـر من b ، و

n هي عدد يحدد ب وثابت عن طـريق متطلبات العناصر الأخرى المتواجدة.

لسهولة فهم الاختـراع الحـالي ، وضحت أدناه الصور الأساسية والتصـورات المفضلة للاختـراع الحالي.

١) عامل حفـاز أوكسيدي للاستخدام في التأكسد الحفـزي أو التأكسد الأموني (ammoxidation) للبروبان أو الأيزوبيوتان في الحالة الغازية (gaseous phase) ،

حيث تشتمل التركيبة الممثلة بالصيغة التاليـة (I):

$$Mo_1V_aSb_bNb_cZ_dO_n \qquad (I)$$

حيث :

Z هي عنصـر واحد على الأقل مختـار من مجموعة مكـونة من التنجستين (tungsten) ، الكروميوم (chromium) ، التيتانيوم (titanium) ، الألومنيوم (aluminum) ، التنتاليوم (tantalum) ، الزركونيـوم (zirconium) ، الهافنيوم (hafnium) ، المنجنيـز (manganese) ، الحـديد (iron) ، الرتنيوم (ruthenium) ، الكوبالت (cobalt) ، الروديوم (rhodium) ، النيكل

(nickel) ، البالاديوم (palladium) ، البلاتنيوم (platinum) ، الزنـــك (zinc) ، البورون (boron) ، الأنديـــوم (indium) ، الجرومانيوم (germanium) ، القصدير (tin) ، الرصاص (lead) ، البزموث (bismuth) ، اليتريوم (yttrium) ، الجاليـــوم (gallium) ، العناصر الأرضـــية النادرة rare earth elements والفلزات الأرضية القلوية alkaline earth metals ، و d, c, b, a هي ، بالترتيب ، نسب ذرية للفانديـــوم (V) ، الأنتيمـــون (Sb) النيوبيوم (Nb) ، والأكسجين ، بالنسبة للموليبدنيوم molybdenum (Mo)،

حيث :

$$0.1 \leq a < 0.4,$$

$$0.1 < b \leq 0.4,$$

$$0.01 \leq c \leq 0.3,$$

$$0 \leq d \leq 1,$$

شريطة أن a أكبـــر من b ، و

n هي عدد يتحدد بمتطلبات التكافؤ للعناصـــر الأخرى الموجودة.

٢) عامل حفاز أكسيدي تبعاً للبند ١ ، حيث أن a في الصيغة رقم ١ تحقق العلاقـــة التاليـــة :

$$0.1 \leq a \leq 0.35$$

٣) عامل حفاز أكســـيدي تبعاً للبندين ١ أو ٢ ، حيث أن b في الصيغة رقم ١ تحقق العلاقـــة التالية : $0.1 < b \leq 0.35$

٤) عامل حفاز أكســـيدي تبعاً لأي من البنـــود ١ إلى ٣ حيث أن c في الصـــيغة ١ تحقق العلاقة التالية : $0.05 \leq c \leq 0.2$

٥) عامل حفاز أكســـيدي تبعاً لأي واحـــدة من البنود ١ إلى ٤ ، حيث أن a في الصيغة رقم ١ تحقق المعادلـــة التالية : $0.15 \leq a \leq 0.28$

٦) عامل حفاز أكســـيدي تبعاً لأي من البنـــود ١ إلى ٥ ، حيث أن b تحقق العلاقـــة التاليـــة :

$$0.2 \leq b \leq 0.33$$

٧) عامل حفاز أكســـيدي تبعاً لأي من البنـــود ١ إلى ٦ ، حيث أن c في الصيغة رقم ١ تحقق العلاقة التاليـــة : $0.05 \leq c \leq 0.15$

٨) عامل حفاز أكسيدي تبعاً لأي من البنـــود ١ إلى ٧ ، حيث أن a و b و c في الصيغة رقم ١ تحقق العلاقـــات التالية :

$$0.15 \leqq a \leqq 0.28,$$

$$0.2 \leqq b \leqq 0.33,$$

$$0.05 \leqq c \leqq 0.15,$$

$$0.5 \leqq a + b + c \leqq 0.69,$$

$$\frac{a}{a + b + c} \geq 0.23; \text{ and}$$

$$0.59 - \frac{0.528a}{a + b + c} \leq \frac{b}{a + b + c}$$

$$\leq 0.7 - \frac{0.524a}{a + b + c}$$

٩) عامل حفاز أكسيدي تبعاً لأي من البنود ١ إلى ٨ ، حيث أن a ، b و c في الصيغة رقم ١ تحقق العلاقة التاليـــة:-

الصيغة رقم ١ تحقق العلاقات التالية:

$$0.16 \leqq a \leqq 0.28,$$

$$0.24 \leqq b \leqq 0.33,$$

$$0.07 \leqq c \leqq 0.15,$$

$$0.53 \leqq a + d + c \leqq 0.67,$$

$$\frac{a}{a + b + c} \geq 0.26; \text{ and}$$

$$0.63 - \frac{0.549a}{a+b+c} \leq \frac{b}{a+b+c}$$

$$\leq 0.68 - \frac{0.529a}{a+b+c}$$

١٠) عامل حفاز أكسيدي تبعاً لأي من البنود ١ إلى ٩ ، حيث أن a ، b و c في الصيغة رقم ١ تحقق العلاقة التاليـــة:-

$$0.16 \leqq a \leqq 0.26,$$

$$0.24 \leqq b \leqq 0.30,$$

$$0.08 \leqq c \leqq 0.12,$$

$$0.57 \leqq a + d + c \leqq 0.60,$$

$$\frac{a}{a+b+c} \geq 0.28;$$

$$0.67 - \frac{0.5975a}{a+b+c} \leq \frac{b}{a+b+c}$$

$$\leq 0.67 - \frac{0.5352a}{a+b+c}$$

١١) عامل حفـــاز أكسيدي oxide catalyst تبعاً لأي من البنـــود ١ إلى ١٠ ، والتي تبدي نمط حيـــود لأشعة أكس x-ray diffraction pattern محصل باستعمال CuKα كمصدر لأشعة أكس X-ray ، قمم عند زوايـــا الحيود (2θ) هي :

22.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ;

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ; or

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} .

١٢) عامل حفاز أكسيدي تبعاً لأي من البنود ١ إلى ١١ ، حيث يشتمل أيضاً على حامل سليكا مثبت عليه العامل الحفاز المسبق ، حيث يتواجد الحامل السليكاتي silica بكمية تتراوح من ٢٠ إلى ٦٠٪ من الوزن بما يعرف بـ SiO_2 ، معتمداً على الوزن المحصل للعامل الحفاز والحامل السليكاتي بما يعرف بـ SiO_2.

١٣) عامل حفاز أكسيدي وفقاً لأي من البنود ١ إلى ١٢ ، حيث أن Z في الصيغة رقم ١ هي عنصر واحد على الأقل يتم اختياره من مجموعة مكونة من التنجستن (tungsten) ، الكروم (chromium) ، التيتانيوم (titanium) ، الألمنيوم (aluminum) ، التنتالوم (tantalum) ، الزيركونيوم (zirconium) ، الحديد (iron) ، البورون (boron) ، الأنديوم (indium) ، الجرمانيوم (germanium) والقصدير (tin).

١٤) عامل حفاز أكسيدي (oxide catalyst) وفقاً لأي من البنود ١ إلى ١٣ والذي يتم إنتاجه بواسطة طريقة تشتمل على توفير مخلوط مادة خام مائية محتوية على مركبات من المولبيدنيوم molybdenum (Mo) ، الفناديوم vanadium (V) ، الأنتيمون antimony ، النيوبيوم niobium (Nb) ، واختيارياً Z ، وتجفيف المخلوط المائي الخام ثم تليه عملية الكلسنة calcination.

١٥) عامل حفاز أكسيدي وفقاً للبند رقم ١٤ حيث يتم إجراء الكلسنة عند ٥٠٠ إلى ٧٠٠ درجة مئوية في جو من غاز خامل inert gas خالي من الأكسجين الجزيئي (molecular oxygen).

١٦) عامل حفاز أكسيدي تبعاً لأي من البندين ١٤ أو ١٥ ، حيث يحتوي أيضاً خليط المادة الخام المائي على حمض أوكساليك (oxalic acid) ، حيث تكون النسبة المولارية لحمض الأوكساليك المسبق إلى مركب النيوبيوم niobium (Nb) بما يعرف بالنيوبيوم في المدى من ١ إلى ١٠.

١٧) طريقة إنتاج الأكريلونيتريل acrylonitrile أو الميث أكريلونيتريل ، شاملاً تفاعل البروبان propane أو الأيزوبيوتان isobutane مع الأمونيا ammonia أو الأكسجين الجزيئي

molecular oxygen في الحالة الغازية gaseous phase في وجود العامل الحفاز الأوكسيدي الناتج بطريقة أي من البنود ١ إلى ١٦.

١٨) طريقة إنتاج حمض الأكريليك acrylic acid أو الميث حمض الأكريليك (meth) acrylic acid ، شاملاً تفاعل البروبان أو الأيزوبيوتان مع الأكسجين الجزئي في الحالة الغازية في وجود العامل الحفاز الأوكسيدي الناتج بطريقة أي واحدة من البنود ١ إلى ١٦.

بأسفل سوف يتم وصف الاختراع الحالي بتفصيل أكبر.

يتم استعمال العامل الحفاز الأكسيدي وفقاً للاختراع الحالي في الأكسدة أو الأكسدة الأمونية للبروبان أو الأيزوبيوتان في الحالة الغازية ، وتشتمل على تكوين ممثل بالصيغة التالية (١):

$$Mo_1V_aSb_bNb_cZ_dO_n$$

في الصيغة ١ ، Z هي عنصر واحد على الأقل ينتقي من مجموعة مكونة من التنجستن tungsten ، الكروم chromium ، التيتانيوم titanium ، الألمنيوم aluminum ، التنتالوم tantalum ، الزيركونيوم zirconium ، الهافنيوم hafnium ، المنجنيز manganese ، الحديد iron ، الروتينيوم ruthenium ، الكوبالت cobalt ، الروديوم rhodium ، النيكل nickel ، البالاديوم palladium ، البلاتين platinum ، الزنك zinc ، البورون boron ، الأنديوم indium ، الجرمانيوم germanium ، القصدير tin ، الرصاص lead ، البيزموت bismuth ، الأيتيريوم yttrium ، الجاليوم gallium ، العناصر الأرضية النادرة rare earth elements والفلزات القلوية الأرضية (alkaline earth metals).

ويفضل أن تكون Z عبارة عن عنصر واحد على الأقل يتم اختياره من مجموعة مكونة من التنجستن tungsten ، الكروم (chromium) ، التيتانيوم (titanium) ، التنتالوم (tantalum) ، الزيركونيوم (zirconium) ، الحديد (iron) ، البورون (boron) ، الأنديوم (indium) ، الجرمانيوم (germanium) والقصدير (tin) . والأكثر تفضيلاً أن Z يتم اختيارها من مجموعة مكونة من التنجستن (tungsten) ، التيتانيوم (titanium) ، الألمنيوم (aluminum) ، الحديد (iron) والبورون (boron).

في الصيغة رقم ١ ، فإن a ، b ، c ، d و n تتعابعياً هي النسب الذريـــة للفناديـــوم vanadium (V) atom ، الأنتيمـــون antimony ، النيوبيوم niobium (Nb) ، Z والأكســـجين ، نسبة إلى الموليبدنيوم molybdenum (Mo) . تقدر النسب الذريـــة a ، b ، c ، d عن طـــريق تعبئة النسب للمركبات المادة الخـــام المسبقة الوصـــف لإنتاج عامل حفاز أكســـيدي وفقاً للاختـــراع الحـــالي.

في الصيغة ١ ، فإنها تحقق العلاقـــة ٠,١ ≦ a < ٠,٤ والأفضل a أكبر من أو تســـاوي ٠,١ أقل من أو تســـاوي ٠,٣ ، والأكثـــر تفضيلاً a أكبـــر من أو تســـاوي ٠,١٥ أقل من أو تساوي ٠,٢٨ . وعندما a تكـــون أقل من ٠,١ أو a أكبـــر من أو تســـاوي ٠,٤ ، فـــإن الانتقائيـــة للميـــث أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile أو حمض (ميث) أكريليـــك (meth) acrylic acid تكـــون منخفضة على نحـــو غير مميز ، أو تقل مع تأخـــر الوقت أثناء عملية التفاعـــل.

في الصيغة ١ ، فإنها تحقق العلاقـــة ٠,١ < a ≦ ٠,٤ ، والأفضـــل a أكبـــر من أو تســـاوي ٠,١ أقل من أو تســـاوي ٠,٣ ، والأكثـــر تفضـــيلاً a أكبر من أو تســـاوي ٠,١٥ أقل من أو تســـاوي ٠,٢٨ . وعنـــدما a تكـــون أقـــل مـــن ٠,١ أو a أكبـــر مـــن أو تســـاوي ٠,٤ ، فـــإن الانتقائيـــة للميت أكريلونيتريل أو حمض (ميث) أكريليـــك تكـــون منخفضـــة على نحـــو غير مميـــز ، أو تقل مع تأخـــر الوقت أثناء عمليـــة التفاعـــل.

في الصيغة ١ ، فإنها تحقق العلاقـــة ٠,١ < b ≦ ٠,٤ ، والأفضـــل b أكبر من أو تســـاوي ٠,١ أقل من أو تســـاوي ٠,٣٥ والأكثـــر تفضيلاً b أكبـــر من أو تســـاوي ٠,٢ أقل من أو تســـاوي ٠,٣٣ . وعندما b تكون أقل من ٠,١ أو a أكبـــر من أو تســـاوي ٠,٤ ، فـــإن الانتقائيـــة للميـــث أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile أو حمـــض (ميث) أكريليك (meth) acrylic acid تكـــون منخفضة على نحو غير مميز ، أو تقل مع تأخـــر الوقت أثناء عمليـــة التفاعـــل.

في الصيغة ١ ، فإنها تحقق العلاقـــة ٠,٠١ ≦ c ≦ ٠,٣ ، والأفضـــل c أكبر من أو تســـاوي ٠,٠٥ أقل من أو تســـاوي ٠,٢ ، والأكثر تفضـــيلاً c أكبر من أو تساوي ٠,٣ ، فـــإن الانتقائيـــة للميـــث أكريلونيتـــريل (meth) acrylonitrile أو حمض (ميث) أكريليك

(meth) acrylic acid تكـــون منخفضة على نحو غير مميز ، أو تقل مع تأخر الوقت أثناء عمليـــة التفاعل.

في الصيغة ١ ، فإنها تحقق العلاقة صفر ≦ d ≦ ١ ، والأفضـــل a أكبر من أو تســـاوي صفر وأقل من أو تســـاوي ٠,٤ ، والأكثر تفضـــيلاً d أكبر من أو تســـاوي ٠,٠١ أقل من أو تســـاوي ٠,١.

عنـــدما يســـتعمل Al كعنصـــر Z ، فإنـــه يفضـــل أن d تحقـــق العلاقـــة صـــفر ≦ d ≦ ٠,١ والأكثر تميـــزاً ٠,٠١ ≦ d ≦ ٠,٠٥.

في الصـــيغة ١ ، فإن a و b تحقـــق العـــلاقة : a أقل من b . عنـــدما a أكبـــر مـــن أو تســـاوي b ، فإن الانتقائيـــة لـــ (ميث) أكريلونيتريل أو حمـــض (ميث) أكريليـــك تعتبـــر منخفضـــة على نحو غير مميـــز ، أو تقل مع تأخـــر الوقت أثناء التفاعـــل.

في الصيغة ١ ، n تمثل عدد مقدر بواسطة وثابتة مع متطلبات الكافؤ للعناصـــر الأخـــرى الموجودة.

في الصيغة ١ تحقق العلاقـــات التالية:-

$$0.15 \leqq a \leqq 0.28,$$

$$0.2 \leqq b \leqq 0.33, \text{ and}$$

$$0.05 \leqq c \leqq 0.15,$$

أيضاً ، وفي مثال مفضل بخصوصية وفقاً للاختـــراع الحالي ، فإنه ليفضل أن تدخـــل a و b و c ضمن المستويات المفضـــلة المسبقة الذكـــر ، ولكن أيضاً تحقق العلاقات المحددة . تحديداً ، يفضل أن تكـــون a و b و c في الصيغة ١ تحقق العلاقـــات التالية :

$$0.15 \leqq a \leqq 0.28,$$

$$0.2 \leqq b \leqq 0.33,$$

$$0.05 \leqq c \leqq 0.15,$$

$$0.5 \leqq a + d + c \leqq 0.69,$$

$$\frac{a}{a + b + c} \geq 0.23; \text{ and}$$

$$0.59 - \frac{0.528a}{a+b+c} \leq \frac{b}{a+b+c}$$

$$\leq 0.7 - \frac{0.524a}{a+b+c}$$

وفي مثال مفضـــل بصفة خاصة وفقاً للاختـــراع الحـــالي ، a و b و c تدخل ضمن المســـتويات المسبقة الذكر والأكثـــر تفضيلاً . وبخاصة ، في المثال المفضـــل وفقاً للاختـــراع الحـــالي ، فإن a و b و c

$$0.16 \leqq a \leqq 0.28,$$

$$0.24 \leqq b \leqq 0.33,$$

$$0.07 \leqq c \leqq 0.15,$$

$$0.53 \leqq a + d + c \leqq 0.67,$$

$$\frac{a}{a+b+c} \geq 0.26; \text{ and}$$

$$0.63 - \frac{0.549a}{a+b+c} \leq \frac{b}{a+b+c}$$

$$\leq 0.68 - \frac{0.529a}{a+b+c}$$

وفي مثال أكثـــر تفضيلاً فإن a و b و c فإن الصيغة ١ تحقق العلاقات التاليـــة :

$$0.16 \leqq a \leqq 0.26,$$

$$0.24 \leqq b \leqq 0.30,$$

$$0.08 \leqq c \leqq 0.12,$$

$$0.57 \leqq a + d + c \leqq 0.60,$$

$$\frac{a}{a + b + c} \geq 0.28; \text{ and}$$

$$0.67 - \frac{0.5975a}{a + b + c} \leq \frac{b}{a + b + c}$$

$$\leq 0.67 - \frac{0.5352a}{a + b + c}$$

وأنه ليفضل أن العامل الحفاز الأكسيدي oxide catalyst وفقاً للاختراع الحالي يبدي ، نمط حيود لأشعة اكس x-ray diffraction pattern محصل باستعمال CuKα كمصدر لأشعة أكس ، قمم عند زوايا الحيود (٢ سيتا 2θ) هي:

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o}; or

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o}.

ويفضل بصفة خاصة أن العامل الحفاز الأكسيدي وفقاً للاختراع الحالي يبدي نمط حيود أشعة أكس باستعمال CuKα كمصدر لأشعة أكس X-ray ، قمم لزوايا حيود (٢ سيتا 2θ) تساوي:

7.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o}; and 45.2 ± 0.3^{o}.

في الاختراع الحالي ، يتم إجراء تحليل حيود أشعة أكس X-ray تحت الظروف التالية :

جهد الأنبوب	٤٠ كيلوفولت
تيار الأنبوب	١٩٠ مللي أمبير
شق الانحراف	١ درجة
شق التفرق	١ درجة
شق الاستقبال	٠,٣ ملليمتر
فاصلة العينات	٠,٠٢ درجة
سرعة المسح	٥ درجة / دقيقة

العامل الحفاز الأكسيدي يبدي ، في نمط حيود أشعة أكس X-ray ، قمم زوايا حيود المذكورة مسبقاً وتبدي بتميز فعالية حفزية عالية وانتقائية عالية وإنتاجية حفزية عالية للمركب المتطلب . السبب لماذا يبدي هذا العامل الحفاز الأكسيدي فعالية حفزية عالية للمركب المتطلب لم تبرهن بعد . على أية حال ، فإنه يفترض بأن هذا العامل الحفاز الأكسيدي يحتوي على أكسيد يبدي ، في نمط حيود أشعة أكس X-ray ، قمم بزوايا حيود (2θ) تساوي 22.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 42.2 ± 0.3^{o} ؛ و/أو أكسيدي يبدي / في نمط حيود أشعة أكس محصل باستعمال $CuK\alpha$ كمصدر لأشعة أكس ، قمم بزوايا حيود (2θ) تساوي ; 7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ؛ وبحيث أن هذا الأكسيد أو الأكاسيد تساهم في تحسين فعالية العامل الحفاز الأوكسيدي . يمكن أن يبدي العامل الحفاز الأكسيدي وفقاً للاختراع الحالي ، نمط حيود أشعة أكس ، بالإضافة إلى القمم المسبقة الذكر ، قمة ذات شدة عالية وكذا فعالية العامل الحفاز الأكسيدي لن تتأثر بالضرر.

فيما بعد ، قمة تظهر عند زاوية حيود محددة (2θ) تساوي $0.3^{o} \pm x$ درجة ويعبر عنها ب "p^{x}" (على سبيل المثال ، قمة تظهر عند زاوية حيود (2θ) تساوي 7.8 ± 0.3^{o} درجة يعبر عنها ك $P^{7.8}$).

في الاختراع الحالي ، يفضل أنه عندما تكون الشدة $p^{22.1}$ فإنها تؤخذ كـ ١٠٠ ،

الشدة لـ $P^{7.8}$ تكون من ٠,٥ إلى ٣٠ ،

الشدة لـ $P^{7.9}$ تكون من ٠,٥ إلى ٣٠ ،

الشدة لـ $P^{27.1}$ تكون من ٣ إلى ٩٠ ،

الشدة لـ $P^{28.1}$ تكون من ١٠ إلى ٣٠٠ ،

الشدة لـ $P^{35.2}$ تكون من ٠,٥ إلى ٣٠ ،

الشدة لـ $P^{36.1}$ تكون من ٥ إلى ٥٠ ،

الشدة لـ $P^{45.2}$ تكون من ٣ إلى ٣٠ ،

يمكن الحصول على الشدة لقمة تظهر في نمط حيود أشعة أكس X-ray كما يلي . على سبيل المثال ، طريقة للحصول على نتائج الشدة لـ $P^{27.1}$ و $P^{28.1}$ يتم توضيحها بأسفل بالإشارة إلى شكل رقم ٢ ، والذي يمثل منظر مكبر لنمط حيود أشعة اكس كما في شكل رقم ١ (نمط حيود أشعة اكس للعامل الحفاز الأكسيدي المحصل في المثال رقم ١) ، وتبين المدى مما يقرب من ٢٥ إلى ٣٠ درجة تقريباً بما يعرف بزاوية الحيود (2θ).

في الشكل رقم ٢ فإن الرمزين A_1 و A_2 يعبران عن القمم لـ $P^{27.1}$ و $P^{28.1}$ على التوالي.

الرمز B_1 ، B_2 و B_3 تتابعياً تعبر عن النقاط التي عندها الخط المنحنى لنمط حيود أشعة أكس يبدي أدنى قيم شدة لزاوية الحيود (٢ سيتا 2θ) التي تكون في المدى من 26.4 ± 0.3^o درجة ، 27.6 ± 0.3^o درجة و 28.8 ± 0.3^o درجة ، تتعابعياً (المدى من زاوية الحيود تلك (2θ) يتم اختياره لكي يحصل على خط قاعدة مناسب (أي خط يصل B_1 ، B_2 و B_3) للحصول على قيم الشدة للقمم) . في الاختراع الحالي ، عادة فإن كل من النقاط التي عندها يبدي الخط المنحني نمط حيود أشعة اكس تناظر نقطة عندها ينفرج الممال إلى صفر ، حيث يؤخذ المكمال في الإحداثيات للمحور 2θ ومحور الشدة.

الرمز C_1 يعبر عن النقطة التي عندها خط مرسوم لأسفل من الجزء العلوي للقمة A_1 رأسياً تجاه المحور ٢ سيتا 2θ يتقاطع مع خط مستقيم يصل النقاط B_1 و B_2 . والرمز C_2 يعبر عن نقطة عندها خط يرسم لأسفل من الجزء العلوي للقمة A_2 رأسياً مع المحور ٢ سيتا ليتقاطع مع خط مستقيم يصل النقاط B_2 و B_3 .

الشدة لـ $P^{27.1}$ يعبر عنه بطول الجزء من الخط المستقيم A_1 C_1 الممتد من الجزء العلوي للقمة A_1 (للشدة $P^{27.1}$) إلى الخط C_1 ؛ والشدة ل $P^{28.1}$ تحدد بطوال الجزء من الخط المستقيم A_2 C_2 الممتد من الجزء العلوي للقمة A_2 للنقطة C_2.

يمكن الحصـــول على قيم الشـــدة للقمم الأخـــرى الظاهـــرة في نمط حيود أشعة أكس X-ray فعلياً بنفس الطـــريقة مسبقة الذكر . تحديداً ، فإن قيم الشـــدة الأخـــرى يمكن الحصـــول عليها كما يلي.

الشـــدة ل $P^{7.8}$ تعرف بالطـــول للجزء من الخط المســـتقيم $P^{7.8}$ $A^{7.8}$ الممتد من القمـــة $A^{7.8}$ للقمة $C^{7.8}$ ، حيث أن النقطـــة $C^{7.8}$ هي نقطة عند خط مرسوم لأسفل من الجـــزء العلوي للقمـــة $A^{7.8}$ رأسياً إلى المحـــور 2θ ليتقاطـــع مع خـــط مســـتقيم يربط النقطتين $B^{7.1}$ و $B^{9.1}$ ، حيث أن النقطتين $B^{7.1}$ و $B^{9.1}$ هي نقطتين عندها يبدي الخط المنحني لنمـــط حيـــود أشعة اكس أدنى قيم شـــدة لزاوية الحيـــود (2θ) الممتدة في المـــدى من 7.1 ± 0.3^{o} درجـــة و 9.1 ± 0.3^{o} درجة ، تتعابعيـــاً.

الشـــدة لـــ $P^{7.8}$ تعرف بالطـــول للجزء من الخط المســـتقيم $P^{7.8}$ $A^{7.8}$ الممتد من القمـــة $A^{7.8}$ للنقطـــة $C^{7.8}$ ، حيث أن النقطـــة $C^{7.8}$ هي نقطة عند خط مرسوم لأسفل من الجـــزء العلوي للقمـــة $A^{7.8}$ رأسياً إلى المحـــور ٢ سيتا 2θ ليتقاطع مع خط مســـتقيم يربط النقطتين $B^{7.1}$ و $B^{9.1}$ ، حيث أن النقطتين $B^{7.1}$ و $B^{9.1}$ هي نقطتين عندها يبـــدي الخط المنحني لنمـــط حيـــود أشـــعة اكس أدنى قيـــم شـــدة لزاوية الحيـــود (2θ) الممتـــدة في المـــدى من 7.1 ± 0.3^{o} درجـــة و 9.1 ± 0.3^{o} درجة ، تتعابعيـــاً.

الشـــدة لـــ $P^{8.9}$ تعرف بالطـــول للجزء من الخط المســـتقيم $C^{8.9}$ $A^{8.9}$ الممتد من القمـــة $A^{8.9}$ للنقطـــة $C^{8.9}$ ، حيث أن النقطـــة $C^{8.9}$ هي نقطة عند خط مرسوم لأسفل من الجـــزء العلوي للقمـــة $A^{8.9}$ رأسياً إلى المحـــور ٢ سيتا 2θ ليتقاطع مع خط مســـتقيم يربط النقطتين $B^{7.1}$ و $B^{9.1}$ ، حيث أن النقطتين $B^{7.1}$ و $B^{9.1}$ هي نقطتين عندها يبدي الخط المنحني لنمـــط حيـــود أشـــعة اكس أدنـــى قيم شـــدة لزاوية الحيـــود (2θ) الممتـــدة في المـــدى من 7.1 ± 0.3^{o} درجـــة و 9.1 ± 0.3^{o} درجة ، تتعابعيـــاً.

الشـــدة لـــ $P^{22.1}$ تعرف بالطـــول للجزء من الخط المســـتقيم $C^{22.1}$ $A^{22.1}$ الممتد من القمـــة $A^{22.1}$ للنقطـــة $C^{22.1}$ ، حيث أن النقطـــة $C^{22.1}$ هي نقطة عند خط مرسوم لأسفل من الجـــزء العلوي للقمـــة $A^{22.1}$ رأسياً إلى المحـــور ٢ سيتا 2θ ليتقاطع مع خط مســـتقيم يربط النقطتين $B^{22.1}$ و $B^{22.9}$ ، حيث أن النقطتين $B^{21.1}$ و $B^{22.9}$ هي نقطتين عندها يبدي الخط المنحني

لنمـــط حيـــود أشعة اكس X-ray أدنى قيم شـــدة لزاوية الحيـــود (2θ) الممتدة في المدى من 21.1 ± 0.3^{o} درجـــة و 22.9 ± 0.3^{o} درجة ، تتعابعيـــاً.

الشـــدة لـــ $P^{35.2}$ تعرف بالطـــول للجزء من الخط المســـتقيم $A^{35.2}$ $C^{35.2}$ الممتد من القمـــة $A^{35.2}$ للقمة $A^{35.2}$ ، للنقطـــة $C^{35.2}$ حيث أن النقطة $C^{35.2}$ هي نقطـــة عند خـــط مرسوم لأسفل من الجـــزء العلـــوي للقمـــة $A^{35.2}$ رأسياً إلى المحـــور 2θ ليتقاطـــع مع خط مســـتقيم يربط النقطتين $B^{34.5}$ و $B^{35.7}$ ، حيث أن النقطتيـــن $B^{34.5}$ و $B^{35.7}$ هي نقطتيـــن عنـــدها يبدي الخط المنحني لنمـــط حيـــود أشعة اكس أدنى قيم شـــدة لزاوية الحيـــود (2θ) الممتدة في المـــدى من 35.7 ± 0.3^{o} درجـــة و 34.5 ± 0.3^{o} درجة ، تتعابعيـــاً.

الشـــدة لـــ $P^{36.1}$ تعرف بالطـــول للجزء من الخط المســـتقيم $A^{36.1}$ $C^{36.1}$ الممتد من القمـــة $A^{36.1}$ للقمة $A^{36.1}$ ، للنقطـــة $C^{36.1}$ حيث أن النقطة $C^{36.1}$ هي نقطة عند خط مرسوم لأسفل من الجـــزء العلوي للقمـــة $A^{36.1}$ رأسياً إلى المحـــور 2θ ليتقاطع مع خط مســـتقيم يربط النقطتين $B^{35.7}$ و $B^{36.5}$ ، حيث أن النقطتين $B^{35.7}$ و $B^{36.5}$ هي نقطتين عندها يبدي الخط المنحني لنمـــط حيـــود أشعة اكس أدنى قيم شـــدة لزاوية الحيـــود (٢ ســـيتا 2θ) الممتدة في المدى من 35.7 ± 0.3^{o} درجـــة و 36.5 ± 0.3^{o} درجة ، تتعابعيـــاً.

الشـــدة ل $P^{45.2}$ تعرف بالطـــول للجزء من الخط المســـتقيم $A^{45.2}$ $C^{45.2}$ الممتد من القمـــة $A^{45.2}$ للنقطـــة $C^{45.2}$ ، حيث أن النقطة $C^{45.2}$ هي نقطة عند خط مرسوم لأسفل من الجـــزء العلوي للقمـــة $A^{45.2}$ رأسياً إلى المحـــور 2θ ليتقاطع مع خط مســـتقيم يربط النقطتين $B^{44.5}$ و $B^{45.8}$ ، حيث أن النقطتين $B^{45.5}$ و $B^{45.8}$ هي نقطتين عندها يبدي الخط المنحني لنمـــط حيـــود أشعة اكس أدنى قيم شـــدة لزاوية الحيـــود (2θ) الممتدة في المدى من 44.5 ± 0.3^{o} درجـــة و 45.8 ± 0.3^{o} درجة ، تتابعيـــاً.

في الاختـــراع الحـــالي ، أنه ليفضل أن نسبة الشدة R تتراوح من ٠,٠١ إلى ٠,٨ ، وبتميز من ٠,٠٣ إلى ٠,٥ ، والأكثـــر تميزاً من ٠,٠٥ إلى ٠,٢ ، حيث أن R تحدد بالصـــيغة التالية:

$$R = I^{27.1} / (I^{27.1} + I^{28.1})$$

حيث

$I^{27.1}$ تمثل الشـــد لـــ $P^{27.1}$ (القمة تظهـــر عند زاوية حيود (٢ سيتا) تساوي 27.1 ± 0.3^{o} درجة) و

$I^{28.1}$ تمثل الشـــد لـــ $P^{28.1}$ (القمة الظاهرة بزاوية حيود ٢سيتا (2θ) 28.1 ± 0.3^{o} درجة).

وأنه يفضل أن العامل الحفاز الأكسيدي وفقاً للاختـــراع الحـــالي يشتمل أيضاً على ناقل سليكاتي silica مثبت عليه العامـــل الحفاز الأكسيدي . حيث ، يفضل أن يكـــون العامل الحفاز الأكسيدي وفقاً للاختـــراع الحالي هو عامل حفاز مدعم بالســـليكا.

في الاختـــراع الحالي ، من المفضل لحامل الســـيليكا أن يوجد في كميـــــة تتراوح من ٢٠ إلى ٦٠٪ وزن ، والأكثـــر تفضيلاً من ٢٥ إلى ٥٥٪ من الـــوزن ، والأفضل من ٤٠ إلى ٥٠٪ بالـــوزن ، معتمداً على الوزن الكلي للعامـــل الحفاز الأوكسيدي وحامل الســـليكا.

عرفت النسبة الوزنية لحامل السيليكا بالصيغة التاليـــة:

النسبة المئوية للوزن لحامل السيليكا

$$= (W2/(W1 + W2)) \times 100$$

حيث تمثل W1 وزن العامل الحفـــاز الأوكسيدي oxide catalyst ، المحسوب من تركيبة المـــواد الخام والأعداد التأكسدية للعناصـــر المكـــونة الموجودة المحتـــواة في المـــواد الخام ، و W2 تمثل وزن حامل الســـيليكا (SiO_2) ، المحسوب من تركيبة مصدر السيليكا.

عندما تكون كمية الناقل السليكاتي silica أقل من ٢٠٪ من الوزن ، تحدث بعض العيـــوب حيث يصبح إجهاد العامل الحفـــاز الأوكسيدي منخفضاً ، والانتقائية للناتـــج من (ميث) أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile أو حمض (ميث) أكريليك (meth) acrylic acid ، والتي تتحقق عن طـــريق استعمال عامل حفاز أكسيدي oxide catalyst ، لتصبح منخفضة .

ومن ناحية أخـــرى عندما تكـــون كمية الناقل السليكاتي silica carrier أكبر من ٦٠٪ من الـــوزن ، فإن الإجهاد للعامل الحفـــاز السليكاتي يصبح أعلى ، على أية حـــال ، فإن الانتقائية والإنتاجية (ميث) أكريلونيتريل أو حمض (ميث) أكريليك ، والتي تتحـــقق عن طـــريق استعمال عامـــل حفاز أكسيدي تصبح منخفضة.

بعد ذلك ، قد تـــم عمـــل تفســـير بأسفل بالأخذ فـــي الاعتبار للمركبات المســـتخدمة في طريقة الاختـــراع الحالي كمصـــدر للعناصـــر المكـــونة للعامـــل الحفـــاز الأوكسيدي (oxide catalyst) غير النيوبيوم niobium (Nb) ، بمعنى ، المركبات المستخدمة كمصادر

للموليبدنيوم molybdenum (Mo) ، الفانديـــوم ، عنصراً واحد على الأقل X مختار من مجمـــوعة مكـــونة من الأنتيموني (antimony) والتيللريوم ، وعنصـــر مكـــون Z اختياري.

تشتمل أمثلة مصـــادر الموليبدنيوم molybdenum (Mo) على الأمونيوم هبتا موليبدات (ammonium heptamolybdate) ، أكاسيد الموليبدنيوم (molybdenum oxides) ، حمض المولبيدك (molybdic acid) ، أوكسي كلوريدات الموليبدنيوم (molybdenum oxychlorides) ، كلوريـــدات الموليبدنـــيوم (molybdenum chlorides) ، ألكوكســـيدات الموليبدنيوم (molybdenum alkoxides) وما شـــابها . لهؤلاء ، يفضـــل الأمونيوم هبتا موليبدات.

تشتمل أمثلة مصـــادر الفانديـــوم (vanadium) على الأمونيـــوم ميتا فانـــدات (ammonium metavanadate) ، أكســـيد الفانديوم vanadium (V) oxide أوكسي كلوريدات الفانديوم (vanadium oxychlorides) ، ألكوســـيدات الفانديوم (vanadium alkoxides) . من هؤلاء يفضل الأمونيـــوم ميتا فاندات وأكسيد الفانديوم vanadium (V) oxide.

تشتمل أمثلة مصـــادر الأنتيموني على أكسيد antimony (III) oxide ، الأنتيموني أكسيد الأنتيموني antimony (IV) oxide ، الأنتيموني أكسيد antimony (V) oxide ، أحماض ميتانتيمونيك metantimonic acids (III) ، أحماض أنتيمونيك antimonic acids (V) : أمونيوم الأنتيمونك ammonium antimonate (V) ، كلوريد الأنتيموني antimony (III) chloride ، أوكسي كلـــوريد الأنتيموني antimony (III) oxychloride ، أكســـيد نترات الأنتيموني antimony (III) nitrate oxide ، ألكوسيدات الأنتيموني antimony alkoxides ، أملاح الحمض العضـــوية organic acid salts ، للأنتيموني antimony ، مثل ترتـــــرات الأنتيموني antimony tartrate ، والأنتيموني الميتالـــي metallic antimony . من هـــؤلاء ، يفضـــل أكسيد الأنتيموني antimony (III) oxide.

تشتمل أمثلة مصادر النيوبيوم niobium على حمض النيوبيك (niobic acid) ، أكسيد النيوبيوم (niobium oxide) ، كلوريد النيوبيوم niobium chloride ، ألكوكسيدات النيوبيوم (niobium alkoxides) (على سبيل المثال $Nb(OCH_2CH_3)_5$ و أملاح عضوية (organic salts) من النيوبيوم (niobium) ، ومنها يفضل حمض النيوبيك (niobic acid).

تشـــتمل الأمثلـــة من مصـــادر العناصـــر Z على أمـــلاح حمض الأوكســـاليك (oxalic acid salts) ، الهيدروكسيدات (hydroxides) ، الأوكسيدات (oxides) ، النتـــرات

(nitrates) ، الأسيتات (acetates) ، أملاح الأمونيوم (ammonium salts) ، الكربونات (carbonates) والألوكسيدات (alkoxides) للعناصر Z.

تختلف الكميات المناسبة من المركبات مسبقة الذكر كمصدر للعناصر المكونة معتمدة على أنواع المركبات المستعملة ، وتنتقي الكميات بحيث يحصل على عامل حفاز أكسيدي له التكوين الممثل بالصيغة ١.

عندما يراد استخدام السليكا silica للحصول على عامل حفاز أوكسيدي مدعم فوق حامل سيليكا ، فيمكن لمحلول السيليكا الغرواني أن تستخدم بتميز كمصدر للسيليكا . أنه من المفضل خصيصاً استخدام محلول السيليكا الغرواني المثبتة بأيونات الأمونيوم (ammonium ions).

فيما يختص بعملية إنتاج العامل الحفاز الأكسيدي وفقاً للاختراع الحالي ، فإنه لا يوجد أية تحديد ما . على أية حال ، فإنه يفضل إنتاج عامل حفاز أكسيدي وفقاً للاختراع الحالي عن طريق عملية تشتمل على الخطوات الثلاث التالية : خطوة لتوفير مزيج مائي لمادة خام محتوية على مركبات من الموليبدنيوم (Mo) molybdenum ، الفناديوم (V) vanadium ، الأنتيمون antimony ، النيوبيوم (Nb) niobium ، واختيارياً عنصر مكون Z (أي خطوة لتحضير مزيج مادة خام مائية) ، خطوة لتجفيف مزيج المادة الخام المائية ، وخطوة لكلسنة calcination مزيج المادة المائية المجففة الناتجة.

في مزيج المادة الخام المائية ، فإن المركبات مسبقة الذكر والمستعملة كمصدر للموليبدنيوم molybdenum ، الفناديوم (V) vanadium ، الأنتيمون antimony ، النيوبيوم (Nb) niobium ، ويحافظ على العنصر المكون Z كما هي ، أو يمكن أن تتواجد في صور مطورة والتي تتكون عن طريق التفاعلات الكيميائية chemical (مثلاً التفاعلات الكيميائية بين المركبات المستعملة كمواد خام).

فيما بعد ، يقدم شرح خاص بالرجوع لطريقة الاختراع الحالي لإنتاج حفاز أكسيدي oxide catalyst . طريقة الاختراع الحالي تتضمن الثلاث خطوات التالية : خطوة توفير خليط مادة خام مائية (أي ، خطوة تحضير خليط مادة خام مائية) ، خطوة تجفيف خليط المادة الخام المائية ، وخطوة تحميص (كلسنة calcination) خليط المادة

الخام المائية المجففة الناتجة . حيث يتم أخذ النماذج المحددة للعملية مسبقة الذكر لإنتاج عامل حفاز أكسيدي وفقاً للاختراع الحالي كأمثلة.

(خطوة تحضير خليط المادة الخام المائية)

يتم تعريض مزيج مائي محتوي على هبتامولبيدات الأمونيوم ammonium heptamolybdate ، ميتافانادات الأمونيوم ammonium metavanadate وأكسيد أنتيمون antimony (III) oxide إلى تفاعل ، وبتفضيل عند ٧٠ إلى ١٠٠ درجة مئوية ، مع التقليب لمدة ١ إلى ٥ ساعات . يعرض المزيج الناتج المحتوي على موليبدنيوم (Mo) ، فانديوم (vanadium) وأنتيمون (antimony) للأكسدة (oxidation) في الهواء أو أكسدة في حالة سائلة عن طريق استعمال بيروكسيد الهيدروجين أو ما شابه ليحصل على مزيج مائي (أ) . وأنه ليفضل أن يتم إجراء الأكسدة إلى مدى حيث يكون التغير اللوني للمزيج المائي من الأزرق الغامق إلى البرتقالي أو البني يكون مرئياً بوضوح . في حالة إجراء الأكسدة في حالة سائلة باستعمال بيروكسيد الهيدروجين ، فإن النسبة المولارية لبيروكسيد الهيدروجين (hydrogen peroxide) إلى الأنتيمون تكون بتفضيل ٠,٥ إلى ٢ . ويفضل أن يكون تركيز الموليبدنيوم (Mo) في المزيج المائي (أ) ٠,٢ مول/كجم أو أكثر ، والأكثر تفضيلاً ٠,٥ مول/كجم أو أكثر.

تبادلياً ، يتم إضافة أكسيد أنتيمون antimony (III) oxide (Sb_2O_3) إلى محلول مائي به هبتامولبيدات أمونيوم مذابة به وبيروكسيد هيدروجين (hydrogen peroxide) مائي ذا تركيز بيروكسيد هيدروجين يساوي ٠,٠١ إلى ٣٠٪ من الوزن (يفضل ٠,١ إلى ١٠٪ من الوزن) ، يتبع بالتقليب عند ٥٠ إلى ٨٠ درجة مئوية . النسبة المولارية لبيروكسيد الهيدروجين إلى الأنتيمون يفضل أن تكون ٠,٥ إلى ٥ . إلى المحلول المائي الناتج يتم إضافة ميتافنادات الأمونيوم ليحصل على مزيج مائي (أ ´) . يفضل أن يكون تركيز الموليبدنيوم للمزيج المائي (أ ´) ٠,٢ مول/كجم أو أكثر ، والأكثر تفضيلاً ٠,٥ مول/كجم أو أكثر . ومن ناحية أخرى ، يتم تحضير المزيج المائي المحتوي على النيوبيوم (ب) عن طريق إذابة حمض نيوبيك في محلول حمض أوكساليك مائي . يفضل أن يكون تركيز النيوبيوم في المزيج المائي المحتوي على النيوبيوم niobium (Nb) (ب) ٠,٠٥ مول/كجم أو أكثر ، والأكثر تفضيلاً ٠,١٥ مول/كجم أو أكثر . النسبة المولارية حمض الأوكساليك إلى

النيوبيوم في المزيج المائي المحتـوي على النيوبيوم تكـون في المدى من ١ إلى ١٠ ، والأكثـر تفضـيلاً من ٢ إلى ٦ والأفضـل من ٢ إلى ٤ . لكي يحصل على العامـل الحفاز الأكسيدي المسبق الذكـر والذي يبدي (في نمط أشعة اكس X-ray ، قمم بزوايا حيـود محددة ، ويفضل بصفة خاصة أن تكون النسبة المولارية لحمض الأوكساليك ، النيوبيوم في المدى من ٢ إلى ٤ . على أية حـال ، عندما ، قبل خطوة الكلسنة المسبقة الذكـر ، فإنه يتم إجـراؤها قبل الكلسـنة ، يمكن الحصـول على العامل الحفـاز الأكسيدي المذكور مسبقاً حتى عندما تكـون النسـبة المولارية لحمض الأوكساليم (oxalic acid) / النيوبيوم (niobium molar) ليست في المـدى من ٢ إلـى ٤ ، ولكن يفضـل أن تكـون النسـبة المولارية في المـدى مـن ١ إلى ١٠.

إلى المزيج المـائي المحتوي على النيوبيوم المحصـل (ب) يتم إضـافة بيروكسيد هيدروجين مائـي (aqueous hydrogen peroxide) . الإضافة ببيروكسيد الهيدروجيـن المائي تمكن من تحسـين فعالية العامل الحفاز الأكسيدي ، حيث يمكن تحسين الحيز الزمنـي الناتج والانتقائية للمركب المتطلـب في الأكسـدة أو الأكسدة الأمونيـة الحفـزية للبروبـان أو الأيزوبيوتـان في الحـالة الغازيـة . عندما يضاف بيروكسيد الهيدروجين المـائي إلى المزيج المـائي المحتوي على النيوبيوم (ب) ، فإن النسبة المولارية لبيروكسيد الهيدروجيـن إلى حمض النيوبيـك (بما يعرف بالنيوبيوم) في المدى من ٠,٥ إلى ١٠ والأكثـر تفضيلاً من ٢ إلى ٦.

بمزج المزيج المـائي المحصل (أ) أو (أ ′) مع المزيج المـائي المحتوي على النيوبيوم (ب) ، ليحصل على المزيـج المائي لمادة خـام . ويعرض المخلوط المـائي لمادة خـام المحصل لخطوة التجفيف التي ستذكر بأسفل.

عندما يراد إنتاج حفاز أكسيد داعـم على حامل سيليكا ، يمكن إضـافة محلـول غرواني من السـيليكا عند أي وقت أثناء الخطـوات الموصوفة – بأعلى للحصول على خليط مادة خـام مائية محتوية على محلـول غرواني من السيليكا ويعرض المخلوط السـابق إلى خطوة التجفيـف.

عندما يـراد إنتاج حفاز أكسيد محتوي على عنصر Z الذي يكـون مكون اختياري ، يمكن إضافة مركب محتوي على عنصـر Z في أي وقت أثناء المراحـل العملية الموصـوفة

– بأعلى للحصول على عنصر Z – محتوي على خليط مادة خام مائية ويعرض لعملية التجفيف التي سيلي وصفها.

(خطوة التجفيف)

يتم تجفيف خليط المادة الخام المائية المتحصل عليها مسبقاً بالتجفيف بالرش أو التجفيف بالتبخير للحصول على مسحوق جاف . يمكن إجراء التجفيف بالرش عن طريق الطرد المركزي ، بواسطة طريقة فوهة التدفق ذات الطورين أو بطريقة فوهة الضغط المرتفع . كمصدر حراري للتجفيف ، من المفضل استخدام الهواء الذي يسخن بالبخار ، سخان كهربي وما شابه ذلك . من المفضل أن تكون درجة حرارة الهواء الساخن عند دخول قطاع المجفف من ١٥٠ حتى ٣٠٠°م . يمكن أيضاً إجراء التجفيف بالرش بشكل ملائم برش خليط مادة خام مائية فوق لوح حديدي الذي يسخن حتى درجة حرارة ١٠٠ حتى ٣٠٠°م.

للحصول على العامل الحفاز الأكسيدي المسبق الذكر والمفضل والذي يبقى ، في نمط حيود أشعة اكس X-ray ، قمم بزوايا حيود محددة ، ويفضل إجراء خطوة التجفيف عن طريق التجفيف بالترذيذ.

(خطوة التحميص " الكلسنة "):

في خطوة التحميص ، يتم تحميص المسحوق الجاف المتحصل عليه في خطوة التجفيف للحصول على أكسيد حفاز . يمكن إجراء الكلسنة (calcination) باستخدام تنور ، مثل التنور الدوراني (rotary kiln) ، تنور نفقي (tunnel kiln) ، تنور كاتم للصوت (muffle kiln) أو تنور طبقة – متميعة (fluidized-bed kiln) . تجري التحميص في جو من غاز خامل (inert gas) ، مثل غاز النيتروجين (nitrogen gas) الذي يكون خالي تماماً من الأوكسجين ، أو بشكل بديل ، في جو يحتوي على غاز أكسدة (مثل غاز محتوي على الأكسجين oxygen) في مزيج مع غاز مختزل (مثل مركب عضوي غازي (مثل البروبان أو البيوتان المشابه) أو أمونيا غازية gas ammonia) . يفضل أن تجري الكلسنة في جو من غاز خامل inert gas ، مثل غاز النيتروجين الذي يكون خالي تماماً من الأكسجين ، الأفضل تحت تدفق من غاز خامل ، عند درجة حرارة ٤٠٠ حتى ٧٠٠°م . الأكثر تفضيلاً ٥٧٠ حتى ٦٧٠°م . يكون زمن الكلسنة عامة ٠,٥ حتى ١٠ ساعات ، يفضل ١

حتى ٣ ساعات . ومن المفضل أن يكون تركيز الأكسجين في غاز خامل سابق – الذكر ١٠٠٠ جزء في المليون أو أقل ، الأفضل ١٠٠ جزء في المليون والأكثر تميزاً ١٠ جزء في المليون ، أو أقل كما قيس بكروماتوجرافية الغاز (gas chromatography) أو باستخدام محلل بقايا الأكسجين . يمكن إجراء الكلسنة بشكل متكرر . قبل الكلسنة ، يمكن تعريض المسحوق الجاف للكلسنة – المسبقة في جو من الهواء أو تحت تيار من الهواء عند ٢٠٠ حتى ٤٢٠°م ، يفضل ٢٥٠ حتى ٣٥٠°م لمدة ١٠ دقائق حتى ٥ ساعات . الحفاز المتحصل عليه بالكلسنة يمكن تعريضه للكلسنة الأخرى في جو من الهواء عند درجة حرارة من ٢٠٠ حتى ٤٠٠°م لمدة ٥ دقائق حتى ٥ ساعات.

العامل الحفاز الأكسيدي المحصل بالطريقة المذكورة في الاختراع الحالي يمكن استعماله كعامل حفاز لإنتاج (ميث) أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile عن طريق الأكسدة الأمونية للبروبان أو الأيزوبيوتان isobutane في الحالة الغازية gaseous phase . أيضاً يمكن استعمال العامل الحفاز الأكسيدي وفقاً للاختراع الحالي كعامل حفاز لإنتاج حمض (ميث) أكريليك عن طريق الأكسدة للبروبان أو الأيزوبيوتان في الحالة الغازية . يفضل استعمال العامل الحفازي الأكسيدي وفقاً للاختراع الحالي بصفة خاصة كعامل حفاز لإنتاج (ميث) أكريلونيتريل ، والأكثر تفضيلاً كعامل حفاز لإنتاج الأكريلونيتريل.

ولا يتطلب أن يكون البروبان (propane) أو الأيزوبيوتان المستعمل لإنتاج حمض (ميث) أكريليك ، والبروبان أو الأمونيا (ammonia) المستعملة لإنتاج (ميث) أكريلونيتريل أن تكون عالية النقاوة ولكن يمكن أن تكون من نوعية تجارية.

تتضمن الأمثلة من المصادر للأكسجين الجزيئي المغذي لنظام التفاعل على الهواء ، الهواء الغني بالأكسجين ، والأكسجين النقي . أيضاً ، فإنه يمكن تخفيف هذا المصدر للأكسجين الجزيئي بالبخار ، الهليوم (helium) ، الأرجون (argon) ، ثاني أكسيد الكربون ، النيتروجين (nitrogen) وما شابه.

في حالة تفاعل الأكسدة الأمونية في الحالة الغازية ، فإن النسبة المولارية للأمونيا إلى البروبان أو الأيزوبيوتان للأكسدة الأمونية (ammoxidation) عامة تكون في المدى من ٠,١ إلى ٠,٥ والأفضل من ٠,٢ إلى ١,٢ . عندما يتم إجراء الأكسدة الأمونية في نمط مدور فإن النسبة المولارية للأمونيا (ammonia) إلى البروبان أو

الأيزوبيوتـــان عند بداية تفاعـــل مستعمل تكون في المدى من ٠,٢ إلى ١ والأكثر تفضيلاً من ٠,٥ إلى ٠,٨.

النسبة المولارية من الأكســـجين الجزيئي (molecular oxygen) إلى البروبـــان أو البيوتـــان المشابه المستخدم للأكسدة الأمونيـــة (ammoxidation) تكون عامة في حدود من ٠,٢ حتى ٦ ، يفضل من ٠,٤ حتى ٤ . عندما يتم إجراء الأكسدة الأمونية في نمط مـــدور ، فإنه يفضل أن تكـــون النسبة المولارية للأكســـجين الجزيئي إلى البروبـــان (propane) أو الأيزوبيوتـــان (isobutane) عند المدخل للمفاعل المستخدم يفضل أن تكـــون في حدود تتراوح من ٠,٨ إلى ٢,٢ والأفضل من ١,٥ إلى ١,٩.

في حـــالة تفاعل الأكسدة في الطـــور الغازي ، فإن النسبة المولاريـــة من الأكســـجين الجزيئي إلى البروبان أو البيوتـــان المشابه المستخدم للأكســـدة تكـــون عامة في حـــدود من ٠,١ ، يفضل من ٠,١ حتى ٥ . ومن المفضل أن يتم إدخـــال البخار داخل نظـــام التفاعل . النسبة المولاريـــة من البخـــار إلى البروبـــان أو البيوتـــان المشابه المستخدم للأكســـدة تكـــون عامة في حدود من ٠,١ حتى ٧٠ ، يفضل من ٣ حتى ٤٠.

وفي كل من تفاعلات الأكسدة الأمونيـــة في طور الغـــاز وتفاعل الأكسدة في الطـــور الغازي ، يكون ضغط التفاعل عامة في حـــدود من ٠,٠١ حتى ١ ميجابار ، يفضل من ٠,١ حتى ٠,٣ ميجابار ، بالنسبة للضغط المطلق.

في تفاعل الأكسدة الأمونيـــة في طور غـــاز ، تكـــون درجة حرارة التفاعل عامـــة في حدود من ٣٠٠ إلى ٦٠٠ درجة مئوية ويفضـــل من ٣٨٠ إلى ٤٧٠ درجة مئوية.

في تفاعل الأكسدة في طـــور الغاز ، تكـــون درجة حـــرارة التفاعل عامة في حدود من ٣٠٠ حتى ٦٠٠°م ، يفضل من ٣٥٠ حتى ٤٤٠°م.

في كل من تفاعل الأكسدة الأمونيـــة في طور الغاز وتفاعل الأكسدة في طور الغاز ، يكون زمن التلامس بين مخزون التغذية الغازي والحفاز عامـــة في حدود من ٠,١ حتى ٣٠ (جم . ثانية / مل) ، يفضل من ٠,٥ حتى ١٠ (جم . ثانية / مـــل) . في طـــريقة الاختـــراع الحالي ، يتم تحديد زمن التلامس وفقاً للصيغة التاليـــة:

$$\text{زمن التلامس (جم . ثانية/مل)} = W \times ٦٠ \times \frac{٢٧٣}{T + ٢٧٣} \times \frac{P + ٠,١٠١}{F \qquad ٠,١٠١}$$

حيث W تمثل الوزن (جم) من الحفاز الموجـــود في المفاعل ؛

F تمثل معدل تدفـــق (مل / دقيقة) من مخزون التغذية الغازي ؛

T تمثل حرارة التفاعل (م) ؛

P تمثل ضغط التفاعل (ميجابار) (ضغط عياري).

يمكن أن يتم كل من تفاعل الأكســـدة الأمونية في الطـــور الغازي gaseous phase وتفاعل الأكسدة في الطـــور الغازي داخل مفاعل تقليدي ، مثل مفاعل الطبقة الثابتـــة ، مفاعـــل الطبقة – المتميعة أو مفاعل الطبقة المتحركة ، يفضل في مفاعل الطبقة المتميعـــة . قد يكـــون أسلوب التفاعل إما أسلوب مـــرور واحد أو بإعادة التدوير.

الطريقة المثلى لإجراء طـــريقة الاختـــراع

فيما يلي ، سيتم شرح الاختـــراع الحالي أكثـــر تفصيلاً بالرجوع للأمثلـــة التاليـــة والأمثلة المقارنة ، التي لا تفيد هدف الاختـــراع الحـــالي.

١) تحويل البروبـــان propane ، انتقائية الأكريل نيتريل وانتقائية حمض الأكـــريليك:

في الأمثلة التالية تم تقديرها بالنسبة لتحـــويل البروبان (٪) حمض الأكريليك وناتج زمن الفراغ (ميكرومـــول / ((جم . ثانية/مل)) من حمض الأكريليك ، التي تحدد ، كما يلي:

تحويل البروبـــان (٪) = مول من البروبان المتفاعل × ١٠٠

مول من إمداد البروبـــان

انتقائية الأكريل نيتريل (٪) = مول من الأكريل نيتريل المتفاعل × ١٠٠

مول من البروبـــان المتفااعـــل

انتقائية حمض الأكريليك (٪) = مول من حمض الأكريليك المتكون × ١٠٠

مول من البروبـــان المتفااعـــل

٢) قياس حيود أشعة أكس X-ray لعامل حفاز أكســـيدي oxide catalyst

يتم تعريض نمط حيـــود أشعة أكس لعامل حفاز أكسيدي للقياس عن طـــريق حيود أشعة أكس باستعمال مقياس حيـــود أشعة أكس MXP-18 (يصنع ويبـــاع بواسطة مـــاك ساينس كو ليمتد ، اليابـــان MAC Science Co.ltd) . الطريقة لتحضير عينة وظـــروف قياس نمط حيود أشعة أكس هي كما يلي.

(تحضـــير عينة)

يتم وضع ٠,٥ جم تقريباً من العامل الحفاز في agate mortar وتعرض للطحن لمدة دقيقتان عن طريق تشغيل يدوي agate pestle . يعرض مسحوق العامل الحفاز الناتج إلى sifting ، وبذا يحصل على عامل حفاز مسحوق ذا حجم جسيمي يساوي ٥٣ ميكرومتر أو أقل . يتم وضع العامل الحفاز المسحوق المحصل فوق منضدة حاملة للعينة لقياس نمط حيود أشعة أكس . توجد بالمنضدة تسنن مستطيل الشكل في السطح (له الأبعاد التالية : طول ٢٠ مللي متر ، عرض ١٦ مللي متر وعمق ٠,٢ ملليمتر) ، ويتم كبس العامل الحفاز المسحوق في التسنن باستعمال سباتيولا spatula من الأستنلس ستيل stainless steel ذا شكل منبسط بحيث يصبح العامل الحفاز المسحوق منبسط الشكل . ظروف قياس نمط حيود أشعة أكس

يتم إجراء قياس نمط حيود أشعة أكس تحت الظروف التالية:

مصدر أشعة اكس	CuK a1 + CuK a2
كاشف	عداد وميض
بللورة واحدة للكروموميتر الأحادي	جرافيت
جهد الأنبوب	٤٠ كيلوفولت
تيار الأنبوب	١٩٠ مللي أمبير
شق الانحراف	١ درجة
شق التفوق	١ درجة
شق الاستقبال	٠,٣ ملليمتر
فاصلة العينات	٠,٠٢ درجة
طريقة المسح	طريقة ٢ سيتا ?2 / سيتا
سرعة المسح	٥ درجة / دقيقة

يتم إجراء تصحيح زاوية الحيود (2θ) عن طريق عمل معايرة باستعمال بيانات حيود أشعة أكس المحصلة بواسطة مسحوق سليكون . أيضاً ، يتم إجراء معالجة لطيفة لنمط حيود أشعة اكس.

فيما يختص بنمط حيود أشعة اكس X-ray المحصلة ، فإن نسبة الشدة intensity (R) تحدد بالمعادلة التالية:

$$R = I^{270.1} / (I^{270.1} + I^{280.1})$$

حيث

$I^{270.1}$ تمثل الشد لـ $P^{270.1}$ (القمة تظهر عند زاوية حيود (2θ) تساوي $27.1 \pm 0.3^{\circ}$ درجة) و

$I^{280.1}$ تمثل الشد لـ $P^{280.1}$ (القمة الظاهرة بزاوية حيود (2θ) $28.1 \pm 0.3^{\circ}$ درجة).

مثال رقم ١

(تحضير العامل الحفاز):

أكسيد حفاز ممثل بالصيغة $Mo_1V_{0.23}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ بالوزن) تم تحضيره كما يلي.

إلى ١,٠٠٠ جم من الماء أضيف ٢٥٠ جم من هبتامولبيدات الأمونيوم ammonium heptamolybdate $[(NH_4)_6Mo_7O_{24}.4H_2O]$ ٣٨,١ جم من ميتافانادات الأمونيوم ٥٣,٦ جم من أكسيد الأنتيمون (III) (Sb_2O_3) ، وتم تعريض الخليط الناتج للتفاعل تحت الارتداد في حمام زيتي في الهواء عند ١٠٠م لمدة ساعتين ، متبوعاً بالتبريد حتى ٥٠°م . يلي ذلك ، أضيف إلى خليط التفاعل الناتج ٨٢٩ جم من محلول غرواني السيليكا الذي به نسبة من SiO_2 حوالي ٣٠٪ بالوزن . يليه التقليب لمدة ساعة واحدة . بعد ذلك ، إلى الخليط الناتج أضيف ٢٥٠ جم من ٥٪ بالوزن بيروكسيد هيدروجين مائي وقلب الخليط الناتج عند ٥٠°م لمدة ساعة واحدة للمعالجة بالأكسدة وذلك للحصول على خليط مائي A) . بالمعالجة الأكسيدية ، يتغير لون الخليط من الأزرق الداكن إلى البني.

من ناحية أخرى ، إلى ١٥٠ جم من الماء تم إضافة ٢٢,٣ جم من حمض النيوبيك nio (نسبة Nb_2O_5 : ٧٦٪ بالوزن) و ٤٣,٤ جم من ثاني هيدرات حمض الأوكساليك oxalic acid dihydrate $(H2C_2O_4 . 2H_2O)$ وسخن الخليط الناتج عند ٦٠°م مع استمرار التقليب لإذابة حمض النيوبيك niobic acid وثاني هيدرات حمض الأوكساليك في الماء ، يليه التبريد حتى ٣٠°م ، للحصول على محلول مائي من النيوبيوم – حمض الأوكساليك (aqueous niobium-oxalic acid) . إلى المحلول المائي من النيوبيوم B niobium (Nb).

حمض الأوكساليك – النيوبيوم المائي المتحصل عليه (B) أضيف إلى المخلوط المائي المحضر مسبقاً A ويقلب المخلوط الناتج عند ٥٠ درجة مئوية لمدة ٣٠ دقيقة في الهواء وبذا يحصل على مخلوط مادة خام مائي.

يعرض المخلوط المائي لمادة خام إلى تجفيف بالترذيذ عن طريق جهاز تجفيف – ترذيذ من نوع طارد مركزياً تحت ظروف حيث درجات الحرارة المدخلة والمخرجة لمجفف جهاز التجفيف بالترذيذ تكون ٢٣٠ و ١٢٠ درجة مئوية ، تتابعياً ، لكي يحصل على مسحوق جاف مشتمل على جسيمات كروية ز تم شحن ١٠٠ جم من المسحوق الجاف المصل داخل حاوية من الكوارتز وتكلسن في أتون kiln عند ٦٤٠ درجة مئوية لمدة ساعتان تحت تدفق من غاز النيتروجين nitrogen gas بمعدل تدفق ٦٠٠ N مللي لتر/دقيقة (N مل تعني مللي لتر مقاسة تحت ظروف طبيعية لدرجة الحرارة والضغط ، أي صفر درجة مئوية تحت ١ ضغط جوي) أثناء دوران حاوية الكوارتز . قدر تركيز الأكسجين لغاز النيتروجين المستعمل للكلسنة عن طريق محلل لبقايا الأكسجين trace oxygen analyzer (موديل ٣٠٦ دبليو ايه ، يصنع ويباع بواسطة شركة تيليدين أناليتيكال أنسترومنتس ، الأمريكية) وقد وجد أن تركيز الأكسجين لغاز النيتروجين هو ١ جزء/مليون.

بين التكوين للعامل الحفاز الأكسيدي والظروف الهامة في عملية إنتاج العامل الحفاز في جدول رقم ١.

فيما يتعلق بالعامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، فإن نمط حيود أشعة أكس X-ray المحصل باستعمال CuKα كمصدر لأشعة أكس قد بين في الشكل رقم ١.

أبدى العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس ، قمم بزوايا حيود (2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

حيث أن R = ٠,٠٨

(الأكسدة الأمونية للبروبان ammoxidation of propane)

تم تعبئة ٠,٣٥ جم من الأكسيد الحفاز المتحصل عليه (W = ٠,٣٥ جم) داخل أنبوب تفاعل من نوع الطبقة المثبتة له قطر داخلي ٤ مم . خليط مخزون تغذية غازي له

نسبة مولارية من البروبان: الأمونيا ammonia : الأكسجين: الهيليوم ١ : ٠,٧ : ١,٧ : ٥,٣ تم تلقيمه داخل أنبوب التفاعل بمعدل تدفق (F) = ٣,٦ (مل/دقيقة) . كانت درجة حرارة التفاعل (T) (درجة الحرارة المخرجة) ٤٣٠°م وكان ضغط التفاعل (P) صفر ميجابار MPa بالنسبة لضغط عياري . زمن التلامس بين الأكسيد الحفاز والخليط الغازي لمخزون التغذية كان ٢,٣ (جم. ثانية/مل) . تم الحصول على زمن التلامس بالمعادلة التالية:

$$\text{Contact time} = \frac{W}{F} \times 60 \times \frac{273}{273+T} \times \frac{P+0.101}{0.101}$$

تم تحليل خليط التفاعل الغازي الناتج باستخدام جهاز كروماتوجرافية الغاز gas chromatography الخطي . تبين النتائج في جدول ١.

<u>مثال رقم (٢) :</u>

(تحضير العامل الحفاز)

يتم تحضير عامل حفاز أكسيدي له الصيغة $Mo_1V_{0.23}Sb_{0.25}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ بالوزن) تم تحضيره كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أن كمية أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide (Sb_2O_3) تتغير من ٥٣,٦ جم إلى ٥١,٦ جم ، وتغير كمية بيروكسيد الهيدروجين المائي ٥٪ بالوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٤١ جم وكمية المحلول الغرواني السليكاتي silica من ٨٢٩ جم إلى ٨٢٣ جم.

تركيب الأكسيد الحفاز oxide catalyst والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ١.

7.8 ± 0.3^o , 8.9 ± 0.3^o , 22.1 ± 0.3^o , 27.1 ± 0.3^o , 28.1 ± 0.3^o , 35.2 ± 0.3^o , 36.1 ± 0.3^o and 45.2 ± 0.3^o ,

حيث أن R = ٠,٠٩

(الأكسدة الأمونية للبروبان ammoxidation of propane)

باستخدام حفاز الأكسيد المتحصل عليه ، أجرى تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثال ١ . تبين النتائج في جدول ١.

مثـــال رقم ٣

(تحضير الحفاز)

عامل حفاز أكسيدي oxide catalyst له الصـــيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.24}Sb_{0.25}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تم تحضـــيره كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـــاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا : أن ، كمية ميتافنادات الأمونيوم ammonium metavanadate (NH_4VO_3) قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٣٩,٧ جم ، وكمية أكســـيد الأنتيمون antimony (III) oxide (Sb_2O_3) من ٥٣,٦ جم إلى ٥١,٦ ، وكمية بيروكسيد الهيدروجين (aqueous hydrogen peroxide) ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٤١ جم وكمية السليكا silica الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٢٧ جم.

تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبيـــن في جـــدول ١.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيـــود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايـــا حيود (2θ) تســـاوي

7.8 ± 0.3^o , 8.9 ± 0.3^o , 22.1 ± 0.3^o , 27.1 ± 0.3^o , 28.1 ± 0.3^o , 35.2 ± 0.3^o , 36.1 ± 0.3^o and 45.2 ± 0.3^o ,

حيث أن R = ٠,٠٩

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجـــري تفاعل الأكســـدة الأمونية للبروبـــان بنفس أسلوب مثال ١ . تبين النتائج في جدول ١.

مثال رقم ٤

(تحضير العامل الحفاز)

$Mo_1V_{0.24}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تم تحضـــيره كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـــاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا : أن ، كمية ميتافنادات الأمونيوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٣٩,٧ جم ، وكمية أكسيد الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٣٣ جم.

تركيب الأكسيد الحفـــاز والعوامل الهامـــة لعملية إنتـــاج الحفاز تبين في جـــدول ١.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس له ، قمم بزوايا حيود (٢ سيتا 2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

حيث أن R = ٠,١

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز oxide catalyst المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية ammoxidation للبروبان propane بنفس أسلوب مثال ١ . تبين النتائج في جدول ١.

مثال رقم ٥

(تحضير العامل الحفاز)

$Mo_1V_{0.25}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تم تحضيره كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا : أن ، كمية ميتافنادات الأمونيوم ammonium metavanadate (NH_4VO_3) قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٤١,٤ جم ، وكمية السيليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٣٦ جم.

تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ١.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايا حيود (٢ سيتا 2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

حيث أن R = ٠,١٠

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثال ١ . تبين النتائج في جدول ١.

مثال رقم ٦

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.20}Sb_{0.29}Nb_{0.11}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضـــر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـــاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا : أنه :

عند تحضير المخلوط المائي (A) ، كمية ميتافنادات الأمونيوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٣٣,١ جم ، وكمية أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide (Sb_2O_3) من ٥٣,٦ جم إلى ٥٩,٨ جم ، وكمية بيروكسيد الهيدروجين ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٧٩ جم وكمية السيليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٤٦ جم ؛ و

عند تحضـــير المحلـــول المائي لحمـــض نيوبيـــوم - أوكســـاليك (B) aqueous niobium-oxalic acid ، فقد تم تغيير كمية الماء من ١٥٠ جم إلى ١٨٠ جم ، وكمية حمض النيوبيك niobic acid من ٢٢,٣ جم إلى ٢٧,٢ وكمية ثنائي هيدرات حمض الأوكساليك oxalic acid dihydrate من ٤٣,٤ جم إلى ٥٣ جم.

تركيب الأكســيد الحفاز والعوامل الهامة لعمليــة إنتاج الحفاز تبين في جــدول ١.

يبدي العامل الحفاز الأكســيدي المحصل ، في نمط حيــود أشعة اكس له ، قمــم بزوايا حيود (٢ سيتا 2θ) تســاوي

7.8 ± 0.3^o , 8.9 ± 0.3^o , 22.1 ± 0.3^o , 27.1 ± 0.3^o , 28.1 ± 0.3^o , 35.2 ± 0.3^o , 36.1 ± 0.3^o and 45.2 ± 0.3^o ,

حيث أن R = ٠,١٤

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجــري تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثــال ١ ما عدا أن معدل التدفق (F) لمخلوط التغذية الغازيــة يتغير من ٣,٦ . مللي لتر/دقيقة) إلى ٣,٣ (مللي لتر/دقيقة) وزمن التلامس يتغير من ٢,٣ (g ثانية/مللي لتر) إلى ٢,٥ (g ثانية/مللي لتر) . تبين النتائج في جدول ١.

مثال رقم ٧

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.22}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضـــر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـــاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا : أن ، كميـــة ميتافنادات الأمونيـــوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٣٦,٤ ، وكمية السيليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٢٥ جم.

تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهـــامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ١.

يبدي العامل الحفاز الأكســـيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس X-ray له ، قمـــم بزوايا حيـــود (٢ سيتا 2θ) تســـاوي

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

حيث أن R = ٠,٠٨

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجـــري تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثـــال ١ . تبين النتائج في جدول ١.

مثال رقم ٨

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.22}Sb_{0.27}Nb_{0.10}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضـــر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـــاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا : أنه ،

عند تحضير المخلوط المائي (A) ، فإن كمية ميتافنادات الأمونيـــوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٣٦,٤ جم ، وكمية أكسيد الأنتيمون من ٥٣,٦ جم إلى ٥٥,٧ جم ، وكمية بيروكسيد الهيدروجين ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٦٠ جم وكمية السيليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٣٦ جم ، وعند تحضـــير المحلول المائي لحمض النيوبيوم – أوكساليك (B) aqueous niobium-oxalic acid فإن كمية المـــاء قد تغيرت من ١٥٠ جم إلى ١٦٥ جم ، وكمية حمض النيوبيك من ٢٢,٣ جم إلى ٢٤,٧ جم وكميـــة ثنائي هيدرات حمض الأوكســـاليك oxalic acid dihydrate من ٤٣,٤ جم إلى ٤٨,٢ جم.

تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهـــامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ١.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس له ، قمم بزوايا حيود (2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

حيث أن R = ٠,١٢

(الأكسدة الأمونية ammoxidation للبروبان propane)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثال ١ . ما عدا أن معدل التدفق (F) لمخلوط التغذية الغازي يتغير من ٣,٦ . (مللي لتر/دقيقة) إلى ٣,٤ (مللي لتر/دقيقة) وزمن التلامس يتغير من ٢,٣ (g ثانية/مللي لتر) إلى ٢,٤ (g ثانية/مللي لتر) . تبين النتائج في جدول ١.

مثال رقم ٩

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي oxide catalyst له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.17}Sb_{0.30}Nb_{0.12}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا : أنه ،

عند تحضير المخلوط المائي (A) ، فإن كمية ميتافنادات الأمونيوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٢٨,٢ جم ، وكمية أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide من ٥٣,٦ جم إلى ٦١,٩ جم ، وكمية بيروكسيد الهيدروجين ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٨٩ جم وكمية السيليكا silica الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٤٦ جم ، و

عند تحضير محلول مائي من حمض نيوبيوم – أوكساليك (B) فإن كمية الماء تغيرت من ١٥٠ جم إلى ٢٠٠ جم ، وكمية حمض النيوبيك من ٢٢,٣ جم إلى ٢٩,٧ جم وكمية حمض الأوكساليك oxalic acid dihydrate من ٤٣,٤ جم إلى ٥٧,٨ جم . تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ١.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايا حيود (٢ سيتا 2θ) تساوي

7.8 ± 0.3° , 8.9 ± 0.3° , 22.1 ± 0.3° , 27.1 ± 0.3° , 28.1 ± 0.3° , 35.2 ± 0.3° , 36.1 ± 0.3° and 45.2 ± 0.3° ,

حيث أن R = ٠,١٦

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية ammoxidation للبروبان propane بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أن معدل التدفق (F) لمخلوط التغذية الغازية يتغير من ٣,٦ . (مللي لتر/دقيقة) إلى ٣,٢ (مللي لتر/دقيقة) وزمن التلامس من ٢,٣ (g ثانية/مللي لتر) إلى ٢,٦ (g ثانية/مللي لتر) . تبين النتائج في جدول ١.

مثال رقم ١٠

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.23}Sb_{0.25}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (٤٠٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا : أن ، كمية أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide تتغير من ٥٣,٦ جم إلى ٥١,٦ جم ، وكمية بيروكسيد الهيدروجين aqueous hydrogen peroxide ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٤١ جم وكمية السليكا silica الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٦٧١ جم.

تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ١.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس له ، قمم بزوايا حيود (٢ سيتا 2θ) تساوي

7.8 ± 0.3° , 8.9 ± 0.3° , 22.1 ± 0.3° , 27.1 ± 0.3° , 28.1 ± 0.3° , 35.2 ± 0.3° , 36.1 ± 0.3° and 45.2 ± 0.3° ,

حيث أن R = ٠,١

(الأكسدة الأمونية ammoxidation للبروبان propane)

باستعمال الأكسدة الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثال ١ ، عدا أن معدل التدفق (F) لمخلوط التغذية الغازي gaseous يتغير من

٣,٦ (مللي لتر/دقيقة) إلى ٤ (مللي لتر/دقيقة) وزمن التلامس من ٢,٣ (g ثانية/مللي لتر) إلى ٢,١ (g ثانية/مللي لتر) . تبين الناتج في جـدول ١.

مثال رقم ١١

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.23}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفاز بنفس أسـلوب مثال ١ ، ما عدا : أنه قد تم إضافة أخرى بـ ١٧٣ جم من بيروكسيد هيدروجين مائي ٥٪ إلى محلول مـائي حمض نيوبيوم – أوكساليك (B).

تركيب الأكسـيد الحفاز والعوامـل الهامـة لعمليـة إنـتاج الحـفاز تبين في جـدول ١.

يبدي العامل الحفـاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيـود أشعة أكس X-ray له ، قمـم بزوايا حيـود (2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^o , 8.9 ± 0.3^o , 22.1 ± 0.3^o , 27.1 ± 0.3^o , 28.1 ± 0.3^o , 35.2 ± 0.3^o , 36.1 ± 0.3^o and 45.2 ± 0.3^o ,

حيث أن R = ٠,٠٨

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسدة الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسـدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثال ١ ، عدا أن معدل التدفق (F) لمخلوط التغذية الغـازي قد تغير من ٣,٦ (مللي لتر/دقيقة) إلى ٤,٧ (مللي لتر/دقيقة) وزمن التلامس من ٢,٣ (g ثانية/مللي لتر) إلى ١,٧ (g ثانية/مللي لتر) . تبين النتائـج في جـدول ١.

مثال المقارنة (١) :

(تحضير الحفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.30}Sb_{0.23}Nb_{0.07}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أنه ،

عند تحضير المخلوط المائي (A) فإن كمية ميتافنادات الأمونيوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٤٩,٧ جم ، وكمية أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide من ٥٣,٦ جم إلى ٤٧,٥ ، وكمية بيروكسيد الهيدروجين ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٢١ جم وكمية السليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٢٦ جم ، و

عند تحضير المحلول المائي لحمض نيوبيوم – أوكساليك (B) aqueous niobium-oxalic acid ، فإن كمية الماء قد تغيرت من ١٥٠ جم إلى ١١٦ جم ، وكمية حمض النيوبيك من ٢٢,٣ جم إلى ١٧,٣ جم وكمية حمض الأوكساليك من ٤٣,٤ جم إلى ٣٣,٧ جم . تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ٢.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايا (٢ سيتا 2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

حيث أن R = ٠,١٨

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثال ١ . تبين النتائج في جدول ٢.

مثال المقارنة (٢) :

(تحضير الحفاز)

عامل حفاز أكسيدي oxide catalyst له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.30}Sb_{0.15}Nb_{0.05}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أنه ،

عند تحضير المخلوط المائي (A) فإن كمية ميتافنادات الأمونيوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٤٩,٧ جم ، وكمية أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide من ٥٣,٦ جم إلى ٣٠,٩ ، وكمية بيروكسيد الهيدروجين ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ١٤٤ جم وكمية السليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٧٧١ جم ، و

عنـــد تحضـــير المحلول المائـــي لحمض نيوبيـــوم – أوكســـاليك (B) ، فإن كميـــة الماء قد تغيرت من ١٥٠ جم إلى ٨٣ جم ، وكمية حمض النيوبيك من ٢٢,٣ جم إلى ١٢,٤ جم وكميـــة حمض الأوكساليك من ٤٣,٤ جم إلى ٢٤,١ جم . تركيب الأكسيد الحفاز والعوامـــل الهامة لعملية إنتاج الحفـــاز تبين في جدول ٢.

يبدي العامل الحفـــاز الأكسيدي oxide catalyst المحصل ، في نمط حيـــود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايـــا حيود (٢ سيتا 2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

حيث أن R = ٠,١٠

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكســـدة الحفـــاز المتحصـــل عليه ، يجري تفاعـــل الأكســـدة الأمونيـــة للبروبـــان بنفس أســـلوب مثال ١ ، ما عدا أن معـــدل التدفق (F) لمخلـــوط التغذيـــة الغـــازي قـــد تغيـــر من ٣,٦ (مللي لتـــر/دقيقـــة) إلى ٣,٧ (مللي لتـــــر/دقيقة) وزمـــن التلامـــــس من ٢,٣ (g ثانية/مللي لتـــر) إلـــى ٢,٢ (g ثانيـــة/مللي لتـــر) . وتبيـــــن النتائـــج فـــــي جـــدول ٢.

<u>مثال المقارنة (٣) :</u>

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.30}Sb_{0.20}Nb_{0.05}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـــاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أنه ،

عند تحضـــير المخلـــوط المائـــي (A) فإن كميـــة ميتافنـــادات الأمونيوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٤٩,٧ جم ، وكمية أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide من ٥٣,٦ جم إلى ٤١,٣ ، وكميـــة بيروكســـيد الهيدروجيـــن ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ١٩٢ جم وكمية السليكا silica الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٠٠ جم ، و

عنـــد تحضـــير المحلـــول المائي لحمـــض نيوبيـــوم – أوكســـاليك (B) ، فإن كميـــة الماء قد تغيرت من ١٥٠ جم إلى ٨٣ جم ، وكمية حمض النيوبيك من ٢٢,٣ جم إلى

١٢,٤ جم وكمية حمض الأوكساليك من ٤٣,٤ جم إلى ٢٤,١ جم . تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ٢.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايا حيود (2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

حيث أن R = ٠,١٢

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثال ١ . وتبين النتائج في جدول ٢.

مثال المقارنة (٤) :

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.25}Sb_{0.5}Nb_{0.125}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أنه ،

عند تحضير المخلوط المائي (A) فإن كمية ميتافنادات الأمونيوم (ammonium metavanadate) قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٤١,٤ جم ، وكمية أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide من ٥٣,٦ جم إلى ١٠٣,٢ جم ، وكمية بيروكسيد الهيدروجين (aqueous hydrogen peroxide) ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٤٨١ جم وكمية السليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٩٨٩ جم ، و

عند تحضير المحلول المائي لحمض نيوبيوم – أوكساليك (B) ، فإن كمية الماء قد تغيرت من ١٥٠ جم إلى ٢١٠ جم ، وكمية حمض النيوبيك من ٢٢,٣ جم إلى ٣٠,٩ جم وكمية حمض الأوكساليك من ٤٣,٤ جم إلى ٦٠,٣ جم . تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ٢.

يبدي العامل الحفـــاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيـــود أشـــعة اكـــس لـــه ، قمـــم بزوايـــا حيود (٢ ســـيتا) تـــساوي , 22.1 ± 0.3^o , 28.1 ± 0.3^o , 36.1 ± 0.3^o and 45.2 ± 0.3^o وليس بزوايا حيـــود , 28.1 ± 0.3^o , 35.2 ± 0.3^o , 36.1 ± 0.3^o and 45.2 ± 0.3^o

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكســـدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أن معدل التدفق (F) لمخلوط التغذية الغـــازي قد تغير من ٣,٦ (مللي لتر/دقيقة) إلى ٢ (مللي لتر/دقيقة) وزمن التلامس من ٢,٣ (g ثانية/مللي لتر) إلى ٤,٢ (g ثانية/مللي لتر) . وتبين النتائـــج في جـــدول ٢.

مثال المقارنة (٥) :

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.3}Sb_{0.3}Nb_{0.1}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـــاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أنه ،

عنـــد تحضيـــر المخلـــوط المائـــي (A) فـــإن كمية ميتافنادات الأمونيوم قد تغيـــرت من ٣٨,١ جم إلى ٤٩,٧ جم ، وكميـــة أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide من ٥٣,٦ جم إلى ٦١,٩ جم ، وكميـــة بيروكسيد الهيدروجين ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٨٩ جم وكمية السليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٨١ جم ، و

عند تحضير المحلول المائي لحمض نيوبيوم – أوكساليك (B) ، فإن كميـــة الماء قد تغيرت من ١٥٠ جم إلى ١٦٦ جم ، وكمية حمض النيوبيك من ٢٢,٣ جم إلى ٢٤,٧ جم وكميـــة حمـــض الأوكساليك من ٤٣,٤ جم إلـــى ٤٨,٢ جم . تركيب الأكسيد الحفاز والعوامـــل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ٢.

يبدي العامل الحفـــاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيـــود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايـــا حيود (٢ سيتا 2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^o , 8.9 ± 0.3^o , 22.1 ± 0.3^o , 27.1 ± 0.3^o , 28.1 ± 0.3^o , 35.2 ± 0.3^o , 36.1 ± 0.3^o and 45.2 ± 0.3^o ,

حيث أن R = ٠,٠٦

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان بنفس أسلوب مثال ١ . وتبين النتائج في جدول ٢.

مثال المقارنة (٦) :

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.3}Sb_{0.3}Nb_{0.5}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أنه ،

عند تحضير المخلوط المائي (A) فإن كمية ميتافنادات الأمونيوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٤٩,٧ جم ، وكمية أكسيد الأنتيمون antimony (III) oxide من ٥٣,٦ جم إلى ٦١,٩ جم ، وكمية بيروكسيد الهيدروجين ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٨٩ جم وكمية السليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٥٥ جم ، و

عند تحضير المحلول المائي لحمض نيوبيوم – أوكساليك (B) aqueous niobium-oxalic acid ، فإن كمية الماء قد تغيرت من ١٥٠ جم إلى ٨٤ جم ، وكمية حمض النيوبيك من ٢٢,٣ جم إلى ١٢,٤ جم وكمية حمض الأوكساليك من ٤٣,٤ جم إلى ٢٤,١ جم . تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ٢.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايا حيود (2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^o , 8.9 ± 0.3^o , 22.1 ± 0.3^o , 27.1 ± 0.3^o , 28.1 ± 0.3^o , 35.2 ± 0.3^o , 36.1 ± 0.3^o and 45.2 ± 0.3^o ,

حيث أن R = ٠,١٢

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية ammoxidation للبروبان propane بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أن معدل التدفق (F) لمخلوط التغذية الغازي قد تغير من ٣,٦ (مللي لتر/دقيقة) إلى ٢ (مللي لتر/دقيقة)

وزمـــن التلامس من ٢,٣ (g ثانية/مللي لتر) إلى ٤,٢ (g ثانية/مللي لتر) . وتبين النتائـج في جـدول ٢.

مثال المقارنة (٧) :

(تحضير عامل حفاز)

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.3}Sb_{0.3}O_n/SiO_2$ (٤٥٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أنه ،

عنـد تحضـير المخلـوط المائـي (A) فإن كميـة ميتافنادات الأمونيوم قد تغيرت من ٣٨,١ جم إلى ٤٩,٧ جم ، وكمية أكسيد الأنتيمون من ٥٣,٦ جم إلى ٦١,٩ جم ، وكميـة بيروكسيد الهيدروجين ٥٪ من الوزن من ٢٥٠ جم إلى ٢٨٩ جم وكمية السليكا الغروانية من ٨٢٩ جم إلى ٨٣٠ جم ، و

لم يتـم اسـتعمال المحلـول المائـي لحمـض نيوبيـوم – أوكسـاليك (B).

تركيب الأكسيد الحفاز والعوامـل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ٢.

يبدي العامل الحفـاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيـود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايـا حيود (2θ) تساوي

22.1 ± 0.3^o , 27.1 ± 0.3^o , 28.1 ± 0.3^o , 35.2 ± 0.3^o , 36.1 ± 0.3^o and 45.2 ± 0.3^o ,

وليس بزوايا حيـود 7.8 ± 0.3^o and 8.9 ± 0.3^o.

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

باسـتعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليـه ، يجري تفاعـل الأكسـدة الأمونية للبروبان بنفـس أسـلوب مثال ١ ، ما عدا أن معدل التدفـق (F) لمخلـوط التغذية الغـازي قد تغيـر من ٣,٦ (مللي لتر/دقيقـة) إلى ٢ (مللي لتـر/دقيقـة) وزمن التلامـس من ٢,٣ (g ثانية/مللي لتر) إلى ٤,٢ (g ثانية/مللي لتر) . وتبين النتائـج في جـدول ٢.

جدول رقم ١

	ظروف عملية	إنتاج العامل	الحفاز (١)	الأكسدة	الأمونية	للبروبان	
	$H_2C_2O_4/Nb$	H_2O_2/Sb	H_2O_2/Nb	زمن التلامس	تحويل البروبان٪	الانتقائية للأكريلونيتريل٪	التكوين
مثال ١	٢,٧	١	صفر	٢,٣	٤٨,٥	٦٦,٤	$Mo_1V_{0.23}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ٢	٢,٧	١	صفر	٢,٣	٤٨,٤	٦٦,٤	$Mo_1V_{0.23}Sb_{0.25}Nb_{0.09}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ٣	٢,٧	١	صفر	٢,٣	٤٨,٦	٦٦,١	$Mo_1V_{0.24}Sb_{0.25}Nb_{0.09}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ٤	٢,٧	١	صفر	٢,٣	٤٨,٢	٦٦,٢	$Mo_1V_{0.24}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ٥	٢,٧	١	صفر	٢,٣	٤٨,١	٦٦	$Mo_1V_{0.25}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ٦	٢,٧	١	صفر	٢,٥	٤٨,٩	٦٤,٨	$Mo_1V_{0.20}Sb_{0.29}Nb_{0.11}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ٧	٢,٧	١	صفر	٢,٣	٤٨,٧	٦٥,٨	$Mo_1V_{0.22}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ٨	٢,٧	١	صفر	٢,٤	٤٨,٧	٦٥,٥	$Mo_1V_{0.22}Sb_{0.27}Nb_{0.10}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ٩	٢,٧	١	صفر	٢,٦	٤٨,٢	٦٤,٨	$Mo_1V_{0.17}Sb_{0.30}Nb_{0.12}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ١٠	٢,٧	١	صفر	٢,١	٤٩	٦٦,٨	$Mo_1V_{0.23}Sb_{0.25}Nb_{0.09}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال ١١	٢,٧	١	صفر	١,٧	٤٩,٥	٦٨	$Mo_1V_{0.23}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2(45wt\%)$

جدول رقم ٢

	ظروف عملية	إنتاج العامل	الحفاز (١)	الأكسدة	الأمونية	للبروبان	
	$H_2C_2O_4/Nb$	H_2O_2/Sb	H_2O_2/Nb	زمن التلامس	تحويل البروبان٪	الانتقائية للأكريلونيتريل٪	التكوين
مثال مقارن ١	٢,٧	١	صفر	٢,٣	٤٨,٣	٦٣,٣	$Mo_1V_{0.30}Sb_{0.23}Nb_{0.07}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال مقارن ٢	٢,٧	١	صفر	٢,٢	٤٨,٨	٦١,٣	$Mo_1V_{0.30}Sb_{0.15}Nb_{0.05}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال مقارن ٣	٢,٧	١	صفر	٢,٣	٤٨,٦	٦٢,٦	$Mo_1V_{0.30}Sb_{0.20}Nb_{0.05}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال مقارن ٤	٢,٧	١	صفر	٤,٢	٩	٢٣	$Mo_1V_{0.25}Sb_{0.5}Nb_{0.125}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال مقارن ٥	٢,٧	١	صفر	٢,٣	٤٠	٥٣	$Mo_1V_{0.3}Sb_{0.3}Nb_{0.1}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال مقارن ٦	٢,٧	١	صفر	٤,٢	٣٤	٤٩,١	$Mo_1V_{0.3}Sb_{0.3}Nb_{0.05}O_n/SiO_2(45wt\%)$
مثال مقارن ٧	٢,٧	١	صفر	٤,٢	٤,٥	٥,٢	$Mo_1V_{0.3}Sb_{0.3}O_n/SiO_2(45wt\%)$

ملاحظات على الجدولين ١ و ٢ :

١) $H_2C_2O_4/Nb$: النسبة المولارية حمض أوكساليك oxalic acid / نيوبيوم niobium molar فيما يختص بمحلول حمض أوكساليك-نيوبيوم مائي (B).

H_2O_2/Sb : النسبة المولارية بيروكسيد هيدروجين / أنتيمون antimony molar فيما يختص بمعالجة أكسدة oxidation لمزيج مائي (A).

H_2O_2/NB : النسبة المولارية لبيروكسيد هيدروجين hydrogen peroxide / نيوبيوم فيما يختص بمحلول مائي حمض أوكساليك-نيوبيوم aqueous niobium-oxalic acid (B).

٢) ظروف التفاعل للأكسدة الأمونية (ammoxidation) الحفزية للبروبان في الحالة الغازية (gaseous phase) هي كما يلي . تكوين مخلوط تغذية غازية (بروبان propane : أمونيا (ammonia) : أكسجين جزيئي (molecular oxygen) : هليوم helium) بنسبة مولارية (molar) تساوي ١ : ٠,٧ : ١,٧ : ٥,٣.

درجة حرارة التفاعل = ٤٢٠ درجة مئوية.

مثال رقم ١٢

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

يتم تعبئة ٣٠ جرام من عامل حفاز أكسيدي محصل من المثال ١ داخل أنبوب تفاعل طبقة مائعة مصنوع من زجاج فايكور ذا قطر داخلي يساوي ٢٥ مللي متر . يتم تلقيم مخلوط تغذية غازية ذا نسبة مولارية من بروبان: أمونيا: أكسجين جزيئي : هليوم تساوي ١ : ٠,٧ : ١,٦٨ : ٥,٣٢ داخل أنبوب التفاعل بمعدل تدفق يساوي ٤٢٠ (ملليلتر/دقيقة) . درجة حرارة التفاعل تساوي ٤٤٠ درجة مئوية (درجة الحرارة الداخلية) ، وضغط التفاعل يساوي ٠,٠٤٩ ميجا باسكال بما يعرف بضغط القياس (gauge pressure) ، وزمن التلامس يكون ٢,٤ . (g ثانية/ملليلتر).

يتم تحليل مخلوط التفاعل الغازي الناتج بعد بدء التفاعل ب ٢٤ ساعة ، ٢٤٠ ساعة ، ٤٠٠ ساعة و ١٠٠٠ ساعة تتابعياً عن طريق جهاز كروماتوجرافية غازي . تدون النتائج في جدول رقم ٣.

مثال رقم ١٣

يتم إجراء تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان فعلياً بنفس طريقة المثال رقم ١٢ ، عدا أنه يتم تغيير ٣٠ جم من العامل الحفاز الأكسيدي المحصل من المثال

١ ب ٢٥ جم من العامل الحفاز الأكسيدي المحصل من المثال ١١ ، يغير معدل التدفق ((F لمخلوط التغذية الغازي منه ٤٢٠ (ملليلتر/دقيقة) إلى ٤٦٠ (ملليلتر/دقيقة) ويتغير زمن التلامس من ٢,٤ (g ثانية/ملليلتر) إلى ١,٨ (g ثانية/ملليلتر) . تبين النتائج في جدول رقم ٣.

كما يتضح من نتائج المثالين ١٢ و ١٣ ، وعن طريق استعمال عامل حفاز أكسيدي وفقاً للاختراع الحالي ، حتى في الأكسدة الأمونية الحفزية المستمرة للبروبان في الحالة الغازية gaseous phase باستعمال مخلوط تغذية غازية ذا ضغط جزئي عال للبروبان ، وتظل الانتقائية للمنتج المطلوب (مثلاً الأكريلونيتريل acrylonitrile) بمستوى عالي ولفترة طويلة.

مثال مقارن رقم ٨

يتم إجراء تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان فعلياً بنفس الطريقة كما في المثال رقم ١٢ ، عدا أن ال ٣٠ جم من العامل الأكسيدي الحفاز المحصل من المثال ١ (والتي تبدي أعلى انتقائية ، عند تفاعل الأكسدة الأمونية للبروبان ، للأكريلونيتريل acrylonitrile عبر الحفازات الأكسيدية المحصلة في الأمثلة المقارنة) ويتغير زمن التلامس من ٢,٤ (g ثانية/ملليلتر) إلى ٢,٨ (g ثانية/ملليلتر).

متى وجد أن العامل الأكسيدي الحفاز المستعمل يتلف مع تأخر الزمن ، فإن معدل التدفق F لمخلوط التغذية الغازية يتحكم فيه بحيث يظل تحويل البروبان propane لما يقرب من ٥٠٪ . بعد ٢٤٠ ساعة من بدء التفاعل ، يكون معدل التدفق هو ٣٨٠ (ملليلتر/دقيقة) وبعد ٤٠٠ ساعة من بدء التفاعل يصبح معدل التدفق ٣٦٠ (ملليلتر/دقيقة).

على أية حال ، فإن انتقائية الأكريلونيتريل acrylonitrile تنخفض على نحو واضح ، ينتهي التفاعل بعد ٤٠٠ ساعة من بدء التفاعل . تبين النتائج في جدول رقم ٣.

جدول رقم ٣

		الأكسدة		الأمونية		للبروبان	(١)		
	التكوين	٢٤ ساعة	بعد بدء التفاعل	٢٤٠ بدء	ساعة بعد التفاعل	٤٠٠ بدء	ساعة بعد التفاعل	١٠٠٠	ساعة بعد
		تحويل البروبان٪	انتقائية الأكريلونيتريل	تحويل البروبان٪	انتقائية الأكريلونيتريل	تحويل البروبان٪	انتقائية الأكريلونيتريل	تحويل البروبان٪	انتقائية الأكريلونيتريل
مثال ١٢	$Mo_1V_{0.23}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (45wt٪)	٥٠,٢	٦٠,١	٥٠,٠	٥٩,٦	٥٠,٠	٥٩,٧	٤٩,٩	٥٩,٧
مثال ١٣	$Mo_1V_{0.23}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (45wt٪)	٥٠,١	٦١,٨	٥٠,٢	٦١,٤	٥٠,٠	٦١,٤	٤٩,٨	٦١,٤
مثال مقارن ٨	$Mo_1V_{0.30}Sb_{0.23}Nb_{0.07}O_n/SiO_2$ (45wt٪)	٥٠,٠	٥٧,٦	٥٠,٠	٥٤,٥	٥٠,٠	٥٢,٧		

ملاحظات

* ١ ظروف التفاعل للأكسدة الأمونية الحفزية للبروبان في الحالة الغازية gaseous phase هي كما يلي.

تكون لمخلوط تغذية غازية (بروبان: أمونيا: أكسجين ، جزيئي: هليوم) بنسبة مولارية تساوي ١ : ٠,٧ : ١,٦٨ : ٥,٣٢.

درجة حرارة التفاعل هي ٤٤٠°م.

مثال رقم ١٤

(تحضير العامل الحفاز)

عامل حفاز أكسيدي oxide catalyst له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.23}Sb_{0.26}Nb_{0.09}O_n/SiO_2$ (٤١٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـاز بنفس أسلوب مثال ١ ، ما عدا أن كمية المحلـول الغرواني السليكاتي silica قد تغيرت من ٨٢٩ جم إلى ٧٠٤ جم.

تركيـب الأكسـيد الحفـاز والعوامل الهامـة لعمليـة إنتـاج الحفـاز تبيـن فـي جدول ٤.

يبدي العامل الحفـاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيـود أشعة اكس X-ray له ، قمم بزوايـا حيود (2θ) تساوي

7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

(الأكسدة الأمونية للبروبان)

يتم شحن ٠,٣٥ جم من العامل الحفـاز الأكسيدي oxide catalyst المحصل (الوزن = ٠,٣٥ جرام) داخل أنبوب تفاعـل من نوع الطبقة المثبتة ذات قطـر داخلي يساوي ٤ مللي متر . يتم شـحن مخلوط تغذية غازي ذا نسبة مولارية للبروبان: الأكسـجين الجزيئي : البخار : الهليـوم بنسبة ١ : ٣ : ١٤ : ١٠ داخل أنبوب التفاعـل بمعدل تدفـق يسـاوي ٤,٥ (ملليلتر/دقيقة) . درجة حرارة التفاعـل تسـاوي ٢٨٠°م (درجة الحـرارة الخارجـة) وضـغط التفاعـل هو صفر ميجاباسـكال بما يعرف بضغط القياس . زمن التلامس يساوي ٢ g (ثانية/ملليلتر).

يتم تحليـل مخلـوط التفاعـل الغـازي بواسـطة جهـاز كروماتوجرافيـة غاز . تبين النتائـج في جدول ٤.

<u>مثال مقارن رقم ٩</u>

<u>(تحضير عامل حفاز)</u>

عامل حفاز أكسيدي له الصيغة (التركيبة)

$Mo_1V_{0.30}Sb_{0.23}Nb_{0.07}O_n/SiO_2$ (٤١٪ من الوزن) تحضر كما يلي.

أجرى تحضير للأكسيد الحفـاز بنفس أسلوب مقارن مثال ١ ، ما عدا أن كمية المحلـول السليكاتي الغرواني قد تغيرت من ٨٢٩ جم إلى ٧٠٤ جم.

تركيب الأكسيد الحفاز والعوامل الهامة لعملية إنتاج الحفاز تبين في جدول ٤.

يبدي العامل الحفاز الأكسيدي المحصل ، في نمط حيود أشعة اكس له ، قمم بزوايا حيود (٢ سيتا) تساوي

٥ 7.8 ± 0.3^{o} , 8.9 ± 0.3^{o} , 22.1 ± 0.3^{o} , 27.1 ± 0.3^{o} , 28.1 ± 0.3^{o} , 35.2 ± 0.3^{o} , 36.1 ± 0.3^{o} and 45.2 ± 0.3^{o} ,

حيث أن R = ٠,١٨

(الأكسدة الأمونية للبروبان ammoxidation of propane)

باستعمال الأكسيد الحفاز المتحصل عليه ، يجري تفاعل الأكسدة الأمونية ١٠ للبروبان بنفس أسلوب مثال ١٤ . تبين النتائج في جدول ٤.

جدول رقم ٤

		ظروف	إنتاج	الحفاز (١)	أكسدة	البروبان	٪ (٢)
		$H_2C_2O_4/Nb$	H_2O_2/Sb	H_2O_2/Nb	زمن التلامس	تحويل البروبان٪	انتقائية حمض الأكريليك٪
مثال ١٤		٢,٧	١	صفر	٢	٦٣,٨	٥١,٥
مثال مقارن ٩		٢,٧	١	صفر	٢	٦٣,٥	٤٨,١

ملاحظات

١) $H_2C_2O_4/Nb$: النسبة المولارية حمض أوكساليك oxalic acid / نيوبيوم ١٥ niobium molar (Nb) فيما يختص بمحلول حمض أوكساليك – نيوبيوم مائي (B) aqueous niobium-oxalic acid.

H_2O_2/Sb : النسبة المولارية بيروكسيد هيدروجين / أنتيمون فيما يختص بمعالجة أكسدة oxidation لمزيج مائي (A).

H_2O_2/Nb : النسبة المولارية لبيروكسيد هيدروجين / نيوبيوم فيما يختص بمحلول مائي حمض أوكساليك-نيوبيوم aqueous niobium-oxalic acid (B).

٢) ظروف التفاعل للأكسدة الأمونية الحفزية للبروبان في الحالة الغازية هي كما يلي.

تكوين مخلوط تغذية غازية (بروبان: أمونيا: أكسجين جزيئي: هليوم) بنسبة مولارية تساوي ١ : ٣ : ١٤ : ١٠.

درجة حرارة التفاعل = ٣٨٠°م.

الاستخدام الصناعي

عندما تجري الأكسدة (oxidation) الأمونية أو أكسدة البروبان (propane) أو البيوتان المشابه في الطور الغازي gaseous phase في وجود أكسيد حفاز (oxide catalyst) منتج بطريقة الاختراع الحالي ، يمكن إنتاج (ميث) أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile أو حمض (ميث) أكريليك (meth) acrylic acid بانتقائية مرتفعة ويمكن المحافظة على تلك الانتقائية العالية لفترة طويلة ، بحيث يمكن (ميث) أكريلونيتريل (meth) acrylonitrile أو حمض (ميث) أكريليك (meth) acrylic acid بفعالية ولفترة طويلة.

عناصر الحماية

١ ١- حفاز أوكسيدي oxide catalyst للاستخدام في الأكسدة الحفزية catalytic oxidation أو
٢ الأكسدة الآمونية ammoxidation للبروبان propane أو الأيزوبيوتان isobutane في الحالة
٣ الغازية ، حيث تشتمل التركيبة الممثلة بالصيغة التاليـــة (١)

٤ $$Mo_1V_aSb_bNb_eZ_dO_n$$

٥ حيث:

٦ Z هي عنصر واحد على الأقل مختار من مجموعة مكونة من التنجستن tungsten ، الكروم
٧ chromium ، التيتانيوم titanium ، الألومنيوم aluminum ، التنتالم tantalum ، الزركـــون
٨ zirconium ، الهـــافنيوم hafnium ، المنجنيـــز manganese ، الحديـــد iron ، الرتنيـــوم
٩ ruthenium ، الكوبالت cobalt ، الروديوم rhodium ، النيكل nickel ، البالاديوم palladium
١٠ ، البلاتين platinum ، الزنك zinc ، البـــورون boron ، الأنـــديوم indium ، الجرمـــانيوم
١١ germanium ، القصدير tin ، الرصاص lead ، البزموث bismuth ، البتريـــوم yttrium ،
١٢ الجاليـــوم gallium ، العناصر الأرضية النادرة والفلزات الأرضية القلويـــة alkaline earth
١٣ metals ، و d, c, b, a هي ، بالترتيب ، نسب ذرية للفانـــديوم vanadium (V) ، الأنتيمـــون
١٤ antimony (Sb) ، النيوبيوم niobium (Nb) والأكسجين oxygen (O) ، بالنســـبة للموليبدنيوم
١٥ molybdenum (Mo)،

١٦ حيث:

١٧ $0.1 \leq a \leq 0.4$

١٨ $0.1 \leq b \leq 0.4$

١٩ $0.01 \leq c \leq 0.3$

٢٠ $0 \leq d \leq 1$

٢١ n هي عدد يتحدد بمتطلبات التكافؤ للعناصـــر الأخرى الموجودة.

١ ٢- حفـــاز أكســـيدي oxide catalyst وفقاً لعنصـــر الحماية ١ ، حيث أن a في الصـــيغة
٢ رقم ١ تحقـــق العلاقة التاليـــة $0.1 \leq a \leq 0.03$.

١ ٣- حفـــاز أكســـيدي oxide catalyst وفقا لعنصر الحماية ١ ، حيث أن b في الصيغة رقم
٢ ١ تحقق العلاقة التالية $0.1 > b \leq 0.35$.

١ ٤- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصر الحماية ١ ، حيث أن c في الصيغة رقم ١
٢ تحقق العلاقة التالية $0.05 \leq c \leq 0.2$.

١ ٥- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصر الحماية ١ ، حيث أن a في الصيغة رقم ١
٢ تحقـــق المعادلة التالية $0.15 \leq a \leq 0.28$.

١ ٦- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصر الحماية ١ ، حيث أن b في الصيغة رقم ١
٢ تحقـــق العلاقة التاليـــة $0.2 \leq b \leq 0.33$.

١ ٧- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصر الحماية ١ ، حيث أن c في الصـــيغة رقم ١
٢ تحقـــق العلاقة التاليـــة $0.05 \leq c \leq 0.15$.

١ ٨- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصـــر الحماية ١ ، حيث أن a و b و c في
٢ الصـــيغة رقم ١ تحقـــق العلاقة التاليـــة:

٣ $0.15 \leq a \leq 0.28$

٤ $0.2 \leq b \leq 0.33$

٥ $0.05 \leq c \leq 0.15$

٦ $0.5 \leq a+b+c \leq 0.69$

٧ $$\frac{a}{a+b+c} \geq 0.23$$

$$0.59 - \frac{0.528a}{a+b+c} \leq \frac{b}{a+b+c} \leq 0.7 - \frac{0.524a}{a+b+c}$$

٩- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصـــر الحماية ١ ، حيث أن a و b و c في الصيغة رقم ١ تحقق العلاقات التالية:

$$0.16 \leq a \leq 0.28$$

$$0.24 \leq b \leq 0.33$$

$$0.07 \leq c \leq 0.15$$

$$0.53 \leq a+b+c \leq 0.67$$

$$\frac{a}{a+b+c} \geq 0.26 \text{ ، و}$$

$$0.63 - \frac{0.549a}{a+b+c} \leq \frac{b}{a+b+c} \leq 0.68 - \frac{0.529a}{a+b+c}$$

١٠- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصـــر الحماية ١ ، حيث أن a و b و c في الصيغة رقم ١ تحقق العلاقات التالية:

$$0.16 \leq a \leq 0.26$$

$$0.24 \leq b \leq 0.3$$

$$0.08 \leq c \leq 0.12$$

$$0.57 > a+b+c > 0.6$$

$$\frac{a}{a+b+c} \geq 0.28 \text{ ، و}$$

$$0.63 - \frac{0.5975a}{a+b+c} \leq \frac{b}{a+b+c} \leq 0.67 - \frac{0.5352a}{a+b+c}$$

١١- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصر الحماية ١ ، والتي تبدى نمط حيود لأشعة اكس x-ray diffraction pattern محصل باستعمال CuK a كمصدر لأشعة اكس ، قمم عند زوايا الحيود (٢ سيتا sita) هي:
٢٢.١±٠.٣° ، ٢٨.١±٠.٣° ، ٣٦.١±٠.٣° ، ٤٥.٢±٠.٣° ، ٧.٨±٠.٣° ، ٨.٩±٠.٣° ، ٢٢.١±٠.٣° ، ٢٧.١±٠.٣° ، ٣٥.٢±٠.٣° و ٤٥.٢±٠.٣° أو ٧.٨±٠.٣° ، ٨.٩±٠.٣° ، ٢٢.١±٠.٣° ، ٢٧.١±٠.٣° ، ٢٨.١±٠.٣° ، ٣٥.٢±٠.٣° ، ٣٦.١±٠.٣° ، ٤٥.٢±٠.٣°.

١٢- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصر الحماية ١ ، حيث يشتمل أيضاً على حامل سليكا silica مثبت عليه العامل الحفاز catalyst المسبق ، حيث يتواجد الحامل السليكاتي silica المذكور بكمية تتراوح من ٢٠ إلى ٦٠٪ من الوزن بما يعرف بـ SiO_2 ، معتمداً على الوزن الكلي المحصل للعامل الحفاز catalyst الأكسيدي المذكور والحامل السليكاتي silica المذكور بما يعرف بـ SiO_2 .

١٣- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقاً لعنصر الحماية ١ ، حيث أن Z في الصيغة رقم ١ هي عنصر واحد على الأقل يتم اختياره من مجموعة مكونة من التنجستن tungsten ، الكروم chromium ، التيتانيوم titanium ، الألمونيوم aluminum ، التنتالم tantalum ، الزركون zirconium ، الحديد iron ، البورون boron ، الأنديوم indium ، الجرمانيوم germanium والقصدير tin.

١٤- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقاً لعنصر الحماية ١ ، والذي يتم انتاجه بواسطة طريقة تشتمل على توفير مخلوط مادة خام مائية محتوية على مركبات من الموليبدنم molybdenum ، الفانديوم vanadium ، الأنتيمون antimony ، النيوبيوم niobium ، واختيارياً Z ، وتجفيف المخلوط المائي المذكور للمادة الخام ثم تليه عملية الكلسنة calcination .

١٥- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقاً لعنصر الحماية رقم ١٤ ، حيث يتم إجراء الكلسنة عند ٥٠٠ إلى ٧٠٠ درجة مئوية في جو من غاز خامل inert gas خالي من الأكسجين الجزيئي molecular oxygen.

١٦- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصر الحماية ١٤ ، حيث يحتوي أيضاً خليط المادة الخام المائي على حمض أوكساليك oxalic acid ، حيث تكون النسبة المولارية molecular لحمض الأوكساليك oxalic acid المذكور إلى مركب النيوبيوم niobium المذكور بما يعرف بالنيوبيوم niobium في المدى من ١ إلى ١٠.

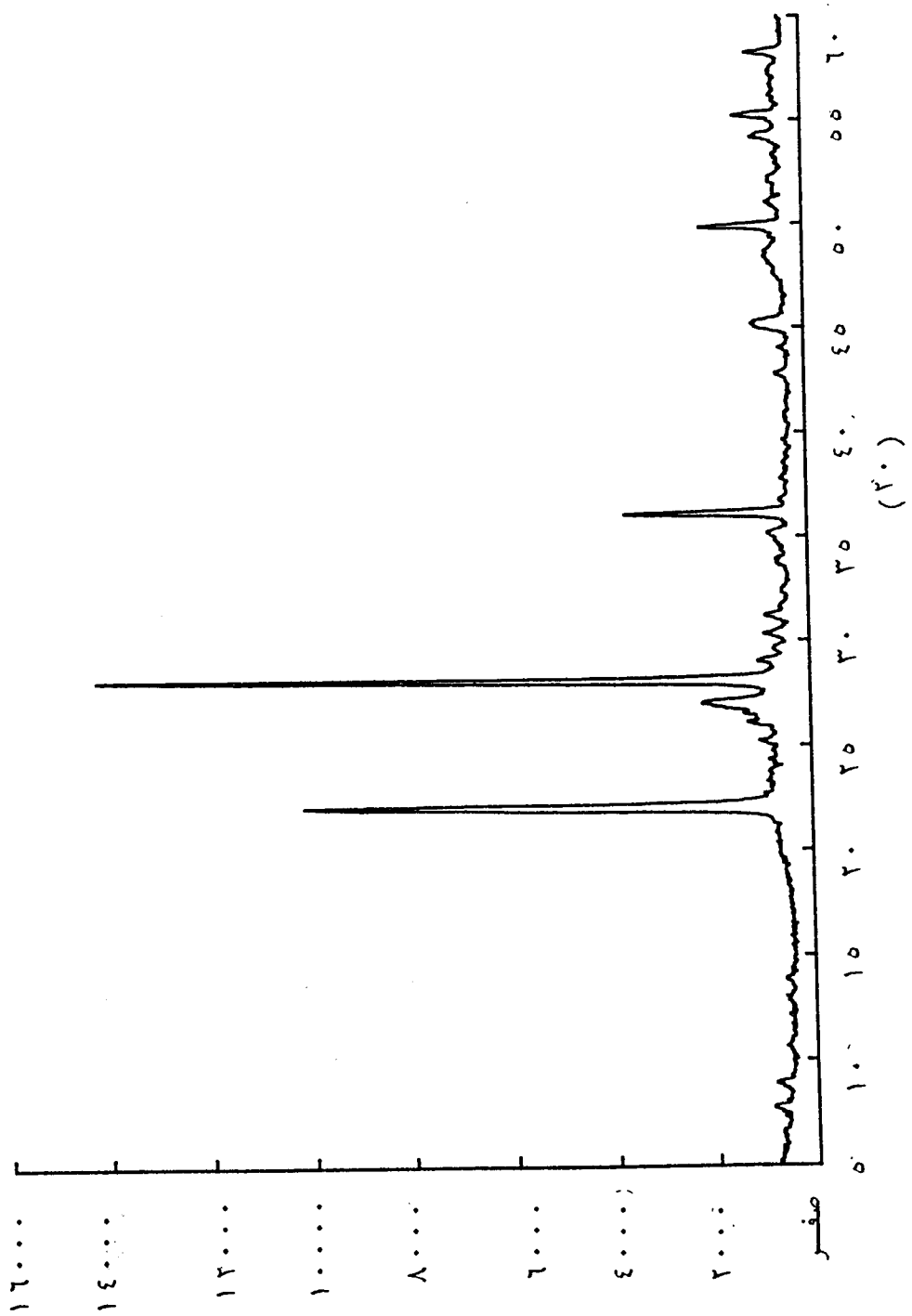
١٧- عملية لإنتاج حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقاً لعنصر الحماية ١والتي تشتمل على توفير مخلوط مادة خام مائية محتوية على مركبات من الموليبدنم molybdenum ، الفانديوم vanadium ، الأنتيمون antimony ، النيوبيوم niobium ، واختيارياً Z على التوالي في كميات موائمة لإنتاج حفاز أكسيدي oxide catalyst يشتمل على مركب ممثل بالصيغة (١) ، وتجفيف مخلوط المائي المذكور للمادة الخام ثم تليه عملية الكلسنة calcinations ، وبذلك يتم الحصول على الحفاز الأكسيدي oxide catalyst الموصوف في عنصر الحماية رقم١ .

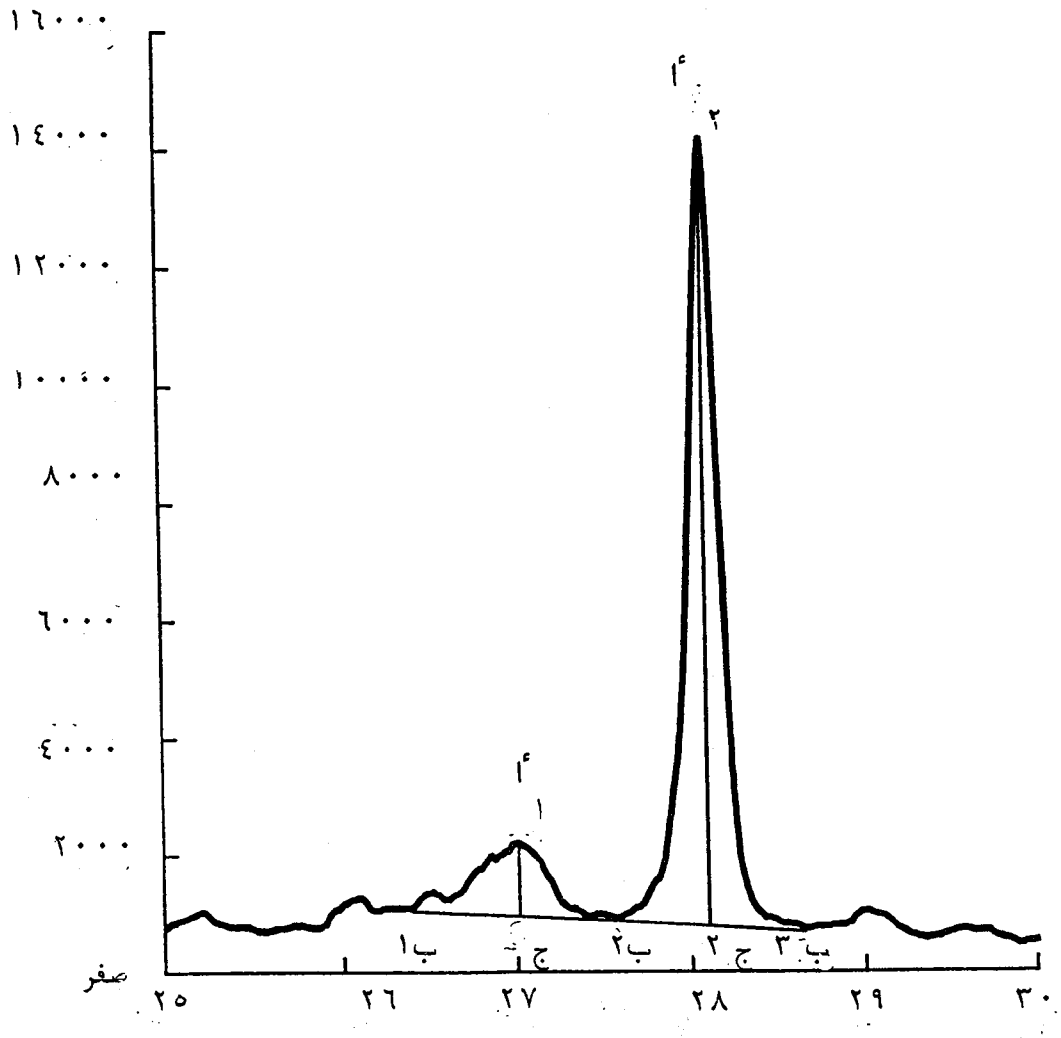
١٨- العملية وفقا لعنصر الحماية رقم ١٧ ، حيث يتم إجراء الكلسنة عند ٥٠٠ إلى ٧٠٠ درجة مئوية في جو من غاز خامل inert gas خالي من الأكسجين الجزيئي molecular oxygen.

١٩- العملية وفقا لعنصر الحماية رقم ١٧ ، حيث يحتوي أيضاً خليط المادة الخام المائي على حمض أوكساليك oxalic acid ، حيث تكون النسبة المولارية molecular لحمض الأوكساليك oxalic acid المذكور إلى مركب النيوبيوم niobium المذكور بما يعرف بالنيوبيوم niobium في المدى من ١ إلى ١٠.

١ ٢٠- حفاز أكسيدي oxide catalyst وفقا لعنصـــر الحماية ١ ، حيث أن d في الصـــيغة رقم
٢ ١ تحقـــق العلاقة التاليـــة $0 \leq d \leq 0.4$.

شکل ۱


۱۶۰۰۰
۱۴۰۰۰
۱۲۰۰۰
۱۰۰۰۰
۸۰۰۰
۶۰۰۰
۴۰۰۰
۲۰۰۰
صفر
۵
۱۰
۱۵
۲۰
۲۵
۳۰
۳۵
۴۰
۴۵
۵۰
۵۵
۶۰
(۴۰)


١٦٠٠٠
١٤٠٠٠
١٢٠٠٠
١٠٠٠٠
٨٠٠٠
٦٠٠٠
٤٠٠٠
٢٠٠٠
صفر
٢٥
٢٦
٢٧
٢٨
٢٩
٣٠
أ٤
٢
أ٤
١
ب١
ج١
ب٢
ج٢
ب٣

(٢٠)