



PATENTDIREKTORATET
TAASTRUP

(21) Patentansøgning nr.: 0491/83

(51) Int.Cl.⁵

C 01 B 33/34

(22) Indleveringsdag: 04 feb 1983

B 01 J 29/28

(41) Alm. tilgængelig: 06 aug 1983

(44) Fremlagt: 23 sep 1991

(86) International ansøgning nr.: -

(30) Prioritet: 05 feb 1982 JP 16395/82

(71) Ansøger: *Research Association for Petroleum Alternatives Development; 4-2, 1-chome, Uchikanda; Chiyoda-ku; Tokyo, JP

(72) Opfinder: Kozo *Takatsu; JP, Noboru *Kawata; JP

(74) Fuldmægtig: Internationalt Patent-Bureau

(54) Fremgangsmåde til fremstilling af et krystallinsk silicat

(56) Fremdragne publikationer

EP off.g.skrift nr. 55045, 57049
US pat. nr. 4199556

(57) Sammen drag:

491-83

Et krystallinsk silicat har, efter at være blevet calcineret i luft ved 550°C, en sammensætning repræsenteret af den almene formel $p(M_{2/n}O) \cdot q(Al_2O_3) \cdot r(SiO_2)$, hvori M betegner et alkalimetall og/eller jordalkalimetall, n betegner atomvalensen for M, og p og q betegner molforhold og er følgende: $0,3 \leq p \leq 3,0$, og $q \leq 10$, og har endvidere bestemte røntgenstrålediffraktionsdata.

Det krystallinske silicat fremstilles ved omsætning af en vandig blanding indeholdende (a) en siliciumoxidkilde, (b) en aluminiumoxidkilde, (c) en alkalimetall- og/eller jordalkalimetalkilde og (d) methanol i bestemte molforhold ved en temperatur på 100 til 300°C.

Tilstedeværelsen af methanol i reaktionssystemet gør det muligt at fremstille et krystallinsk silicat med hidtil ukendt struktur, der kan anvendes som katalysator ved forskellige kemiske reaktioner, f.eks. ved fremstilling af para-xilen ved methylering af toluen, og ved fremstilling af en på aromatiske komponenter rig benzinfraktion ud fra carbonhydrider med et lavt indhold af aromatiske komponenter.

Den foreliggende opfindelse angår en fremgangsmåde til fremstilling af krystallinske silicater. Nærmere angivet vedrører den foreliggende opfindelse en fremgangsmåde til fremstilling af krystallinske silicater, der kan anvendes som katalysatorer til forskellige kemiske reaktioner med tilfredsstillende resultater.

En række krystallinske silicater, naturlige eller syntetiske, har hidtil været kendt, og der har været foreslået mange forskellige fremgangsmåder til fremstilling af krystallinske silicater (se f.eks. EP offentliggørelsesskrifterne nr. 55.045 og 57.049). Disse fremgangsmåder udføres sædvanligvis i vandige opløsninger. Der er imidlertid i den senere tid blevet udviklet fremgangsmåder, ved hvilke reaktionen udføres i vandige opløsninger med alkoholer tilsat (se US-patentskrift nr. 4.199.556 og offentliggjort japansk patentansøgning nr. 43800/77). Krystallinske silicater fremstillet ved de konventionelle fremgangsmåder har de kendte krystalstrukturer, f. eks. ZSM-5 og Zeta-3.

Som resultat af omfattende undersøgelser til udvikling af krystallinske silicater med hidtil ukendte sammensætninger og krystalstrukturer har det vist sig, at tilsætning af en stor mængde methanol til udgangsmaterialerne fører til dannelse af krystallinsk silicat med en krystalstruktur, der er forskellig fra de kendte krystalstrukturer, f.eks. ZSM-5 og Zeta-3.

Ifølge den foreliggende opfindelse tilvejebringes der en fremgangsmåde til fremstilling af et krystallinsk silicat (betegnet som "ISI-1") med en sammensætning repræsenteret af den almene formel I som beskrevet nedenfor og væsentligste røntgenstrålediffraktionsdata som anført i tabel 1 (idet begge er bestemt efter calcinerings i luft ved 550°C). Fremgangsmåden til fremstilling af et krystallinsk silicat ved omsætning af en vandig blanding indeholdende en siliciumoxidkilde, en aluminiumoxidkilde en alkalimetalkilde og en alkohol er ejendommelig ved, at man omsætter en vandig blanding indeholdende (a) siliciumoxidkilden, (b) aluminiumoxidkilden,

(c) alkalimetalkilden og/eller en jordalkalimetalkilde
og (d) methanol i følgende molforhold:

5 siliciumoxid/aluminiumoxid $\geq 10/1$
methanol/vand = 0,1/1 til 10/1
methanol/siliciumoxid = 5/1 til 100/1
hydroxylgruppe/siliciumoxid = 0,01/1 til 0,5/1
alkalimetal og/eller jordalkalimetal/silicium-
oxid = 0,1/1 til 3/1

10 ved en temperatur på fra 100 til 300°C, indtil det ønske-
de krystallinske silicat er dannet.

Almen formel I

$$p(M_{2/n}O) \cdot (Al_2O_3) \cdot q(SiO_2)$$

hvor M betegner et alkalimetal og/eller jordalkalimetal,
15 n betegner atomvalensen for M, og p og q betegner molfor-
hold og er følgende:

$$0,3 \leq p \leq 3,0, \text{ og } q \geq 10.$$

Tabel 1

20	Gitterafstand d (10^{-8} cm)	Relativ intensitet
	10,89 $\pm$ 0,2	kraftig
	8,74 $\pm$ 0,2	middel
	6,94 $\pm$ 0,15	middel
	4,37 $\pm$ 0,1	meget kraftig
25	3,68 $\pm$ 0,1	meget kraftig
	3,62 $\pm$ 0,07	kraftig
	3,46 $\pm$ 0,07	kraftig
	2,52 $\pm$ 0,05	middel

Bestråling: Cu - K $_{\alpha}$

30 Bølgelængde: 1,5418 Å

Opfindelsen beskrives nærmere under henvisning
til tegningen, hvorpå

fig. 1 viser et røntgenstrålediffraktionsmønster
for det i eksempel 1 fremstillede krystallinske silicat,
35 og

fig. 2 viser et røntgenstrålediffraktionsmønster

for det i eksempel 3 fremstillede krystallinske silicat.
I fig. 1 og 2 betyder θ indfaldsvinklen.

I overensstemmelse med fremgangsmåden ifølge opfindelsen sættes (a) en siliciumoxidkilde, (b) en aluminiumoxidkilde, (c) en alkalimetall- og/eller jordalkalimetalkilde og (d) methanol til vand til fremstilling af en vandig blanding, og den således fremstillede vandige blanding omsættes.

Siliciumoxiddkilden (a) som anvendt heri er ikke væsentlig, og der kan anvendes siliciumoxidpulver, kisel-
syre, kolloidt siliciumoxid, opløst siliciumoxid og lignende. Som opløst siliciumoxid kan f.eks. anvendes vandglas-kiselsyresalte og jordalkalimetall-kiselsyresalte, der hver indeholder fra 1 til 5 mol SiO_2 pr. mol Na_2O eller K_2O .

Som aluminiumoxidkilde (b) kan der benyttes forskellige forbindelser, herunder aluminiumsulfat, natriumaluminat, kolloidt aluminiumoxid og aluminiumoxid.

Selv om forholdet mellem siliciumoxid og aluminiumoxid i den vandige blanding kan fastsættes, så det passer til tilfældet, foretrækkes det, at molforholdet mellem siliciumoxid (SiO_2) og aluminiumoxid (Al_2O_3) er mindst 10:1, idet det optimale molforhold ligger fra 40:1 til 1000:1.

Som alkalimetall- og/eller jordalkalimetalkilden (c) kan der anvendes forskellige forbindelser. Af forbindelser, der kan anvendes som alkalimetalkilde, kan der nævnes natriumhydroxid og kaliumhydroxid. Desuden kan der anvendes natriumsilicat og natriumaluminat, der desuden tjener som siliciumoxid- eller aluminiumoxiddkilder. Et særlig foretrukket alkalimetall er natrium. Af forbindelser, der kan anvendes som jordalkalimetalkilden, kan der nævnes calciumnitrat og calciumchlorid.

Molforholdet mellem på den ene side alkalimetall og/eller jordalkalimetall og på den anden side siliciumoxid skal fastsættes inden for området fra 0,1:1 til 3:1, idet området fra 0,2:1 til 1:1 er særlig foretrukket.

Methanol (d) spiller en vigtig rolle ved dannel-

sen af krystalstrukturen af det omhandlede krystallinske silicat, selv om det ikke forbliver deri som en grundbestanddel. Det foretrækkes at anvende en forholdsvis stor mængde methanol. Molforholdet mellem methanol og vand

5 skal således fastlægges inden for området fra 0,1:1 til 10:1, idet området fra 0,2:1 til 5:1 er særlig foretrukket, og molforholdet mellem methanol og siliciumoxid skal fastlægges inden for området fra 1:1 til 100:1, idet området fra 3:1 til 60:1 er særlig foretrukket.

10 De ovenfor beskrevne komponenter (a), (b), (c) og (d) sættes til vand til fremstilling af en vandig blanding og omsættes derpå. I reaktionssystemet skal molforholdet mellem hydroxylgrupper i den vandige blanding og siliciumoxid (hydroxylgruppe/siliciumoxid) reguleres til
15 at ligge inden for området fra 0,01:1 til 0,5:1.

Den vandige blanding omsættes ved opvarmning under de betingelser, f.eks. med hensyn til temperatur og tid, der kræves til dannelse af det ønskede krystallinske silicat. Nærmere angivet er det tilstrækkeligt at
20 opvarme den vandige blanding til en temperatur på fra 100 til 300°C, fortrinsvis fra 120 til 200°C, i et tidsrum på fra 5 timer til 10 dage, fortrinsvis fra 10 timer til 5 dage. Det tryk, hvorunder reaktionen udføres, er ikke væsentligt, og den udføres sædvanligvis under auto-
25 gent tryk. Desuden udføres reaktionen sædvanligvis under omrøring, og den kan om nødvendigt udføres i en atmosfære af en indifferent gas.

Det er nødvendigt, at krystallisationsreaktionen altid udføres i nærværelse af methanol. Med mindre denne
30 fordring opfyldes, kan det ønskede krystallinske silicat ikke dannes.

Efter krystallisationsreaktionen vaskes reaktionsprodukterne med vand og tørres ved en temperatur på ca. 120°C. Der dannes således det ønskede krystallinske silicat med den ved den almene formel I repræsenterede sammensætning og det i tabel 1 anførte væsentligste røntgenstrålediffraktionsmønster (idet begge er bestemt efter calcinering i luft ved 550°C).

De relative intensiteter for de øvrige gitterafstande (d) ud over de i tabel 1 anførte væsentligste gitterafstande er ikke væsentlige for opfindelsen. Dog foretrækkes især de krystallinske silicater, der har et 5 røntgenstrålediffraktionsmønster som anført i tabel 2.

Tabel 2		
	<u>Gitterafstand d (10^{-8} cm)</u>	<u>Relativ intensitet *</u>
10	10,89 $\pm$ 0,2	kraftig
	8,74 $\pm$ 0,2	middel
	6,94 $\pm$ 0,15	middel
	5,43 $\pm$ 0,15	svag
	4,58 $\pm$ 0,15	svag
	4,37 $\pm$ 0,1	meget kraftig
	4,11 $\pm$ 0,1	svag
15	3,68 $\pm$ 0,1	meget kraftig
	3,62 $\pm$ 0,07	kraftig
	3,46 $\pm$ 0,07	kraftig
	3,34 $\pm$ 0,07	svag
	3,30 $\pm$ 0,07	svag
20	3,22 $\pm$ 0,07	svag
	2,98 $\pm$ 0,07	svag
	2,94 $\pm$ 0,07	svag
	2,90 $\pm$ 0,07	svag
	2,78 $\pm$ 0,05	svag
	2,74 $\pm$ 0,05	svag
25	2,71 $\pm$ 0,05	svag
	2,52 $\pm$ 0,05	middel
	2,43 $\pm$ 0,05	svag
	2,37 $\pm$ 0,05	svag
30	Bestråling: Cu - K $_{\alpha}$ Bølgelængde: 1,5418 Å	

* Den relative intensitet bedømmes på basis af intensiteten for gitterafstanden (d) 4,37 $\pm$ 0,1 Å.

	Meget kraftig:	70 - 100%
35	Kraftig	: 40 - 70%
	Middel	: 15 - 40%
	Svag	: 0 - 15%.

Det krystallinske silicat (ISI-1) fremstillet ifølge opfindelsen kan anvendes effektivt som en fast sur katalysator ved forskellige reaktioner. F.eks. kan det krystallinske silicat (ISI-1) anvendes som en katalysator, der gør det muligt at fremstille para-xylene ved methylering af toluen ved en forenklet fremgangsmåde og ydermere med høj selektivitet over et langt tidsrum. Desuden kan det anvendes som en effektiv katalysator til på effektiv måde at fremstille en på aromatiske komponenter rig benzinfraktion ud fra de carbonhydrider, der har et lavt indhold af aromatiske komponenter.

Ved fremstillingen af para-xylene ved methylering af toluen kan der som methyleringsmiddel anvendes methanol, dimethylether, methylchlorid, methylbromid, methyljodid og lignende. Af disse forbindelser foretrækkes methanol. Dette methyleringsmiddel og toluen omsættes i nærværelse af den krystallinske silicat-katalysator, sædvanligvis under følgende betingelser: tryk fra atmosfæretryk til 100 kg/cm^2 (ato), fortrinsvis fra atmosfæretryk til 50 kg/cm^2 (ato), temperatur fra 300 til 800°C , fortrinsvis fra 300 til 500°C , og specifik volumetrisk væsketilførselshastighed (LHSV) fra $0,5$ til 5 h^{-1} , fortrinsvis fra 1 til $2,5 \text{ h}^{-1}$. Molforholdet mellem toluen og methyleringsmidlet ligger fra $0,5:1$ til $10:1$ og fortrinsvis fra $2:1$ til $5:1$.

Det krystallinske silicat (ISI-1) fremstillet ifølge opfindelsen kan også anvendes til fremstilling af en på aromatiske komponenter rig benzinfraktion ud fra en carbonhydriddødblanding med et lavt indhold af aromatiske komponenter. Indholdet af aromatiske komponenter i carbonhydriddødblandingen er ikke væsentligt, og der kan anvendes forskellige carbonhydrider med varierende indhold af aromatiske komponenter. Sædvanligvis anvendes der en carbonhydriddødblanding med et indhold af aromatiske komponenter på 15 vægt% eller mindre. Typiske eksempler er en gasformig carbonhydridfraktion indeholdende fra 2 til 4 carbonatomer, en flydende carbonhydridfraktion, f.

eks. naphtha, og en blanding heraf. Denne reaktion udføres sædvanligvis under følgende betingelser: tryk fra atmosfæretryk til 50 kg/cm^2 (ato), fortrinsvis fra atmosfæretryk til 20 kg/cm^2 (ato), temperatur fra 200 til 550°C, fortrinsvis fra 350 til 450°C, og en specifik vægtmæssig tilførselshastighed (WHSV) fra 0,1 til 50 h^{-1} , fortrinsvis fra 0,5 til 10 h^{-1} .

Det krystallinske silicat (ISI-1) fremstillet ifølge opfindelsen kan følgelig anvendes i vid udstrækning i den almene kemiske industri, navnlig ved jordolieraffinering.

Den foreliggende opfindelse forklares nærmere ved hjælp af de efterfølgende eksempler.

Eksempel 1

Der fremstilledes følgende opløsninger:

Opløsning (A): bestående af 7,52 g aluminiumsulfat (18 hydrater), 17,6 g svovlsyre (97%) og 100 ml vand.

Opløsning (B): bestående af 211 g vandglas (29,0 vægt% SiO_2 , 9,4 vægt% Na_2O og 61,6 vægt% vand) og 46 ml vand.

Opløsning (C): 100 ml vand.

Opløsning (D): 376 ml methanol.

Til opløsning (C) sættes opløsningerne (A) og (B) dråbevis lidt efter lidt og på samme tid, og den opnåede blanding indstilledes derefter på pH 8,5. Desuden sættes opløsning (D) dertil, og der blandedes. Den således fremstillede blanding anbragtes i en 1-liter autoklav og omsattes under omrøring ved 170°C og autogent tryk i 20 timer.

Reaktionsblandingen afkølede, og produktet vaskedes derefter 5 gange med 1,5 liter vand. Derefter tørredes det udfældede faste stof ved 120°C i 6 timer til opnåelse af 55,0 g af et krystallinsk silicat. Dette krystallinske silicat calcineredes i luft ved 550°C. For det således calcinerede krystallinske silicat var sammensætningen (molforhold) $0,7 (\text{Na}_2\text{O}) \cdot (\text{Al}_2\text{O}_3) \cdot 68,5 (\text{SiO}_2)$, og røntgenstrålediffraktionsmønstret er som vist i fig. 1.

Eksempel 2

Der fremstilledes et krystallinsk silicat på samme måde som i eksempel 1, bortset fra at mængden af tilsat aluminiumsilicat (18 hydrater) ændredes til 18,8 g.

- 5 Sammensætningen (molforhold) af det krystallinske silicat, som var blevet calcineret i luft ved 550°C , var:
 $1,1 (\text{Na}_2\text{O}) \cdot (\text{Al}_2\text{O}_3) \cdot 29,5 (\text{SiO}_2)$.

Eksempel 3

(1) Fremstilling af katalysator.

- 10 Der fremstilledes følgende opløsninger:

Opløsning (A): bestående af 11,3 g aluminiumsulfat (18 hydrater), 17,6 g svovlsyre (97%) og 100 ml vand.

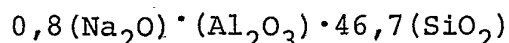
- Opløsning (B): bestående af 211 g vandglas (29,0 vægt% SiO_2 , 9,4 vægt% Na_2O og 61,6 vægt% vand) og 46 ml
 15 vand.

Opløsning (C): 100 ml vand.

Opløsning (D): 376 ml methanol.

- Til opløsning (C) sattes opløsningerne (A) og (B) lidt efter lidt dråbevis og på samme tid, og der
 20 blandedes, og den opnåede blanding indstilledes derefter på pH 8,5. Desuden sattes opløsning (D) dertil, og der blandedes. Den således fremstillede blanding anbragtes i en 1-liter autoklav og omsattes under omrøring ved 170°C og autogent tryk i 20 timer.

- 25 Reaktionsblandingen afkøledes, og produktet vaskedes derefter 5 gange med 1,5 liter vand. Det faste stof, der var blevet frafiltreret, tørredes derpå ved 120°C i 6 timer til opnåelse af 55,0 g af et krystallinsk silicat. Sammensætningen (molforhold) af det krystallinske
 30 silicat, der var blevet calcineret i luft ved 550°C , var:



- Røntgenstrålediffraktionsmønstret er vist i fig. 2. Det kan ses af fig. 2, at det ovenfor fremstillede krystallinske
 35 silicat falder inden for opfindelsens rammer.

0,5 N Saltsyre sattes til det krystallinske silicat i en mængde på 5 ml pr. gram af det krystallinske

silicat, og det krystallinske silicat behandledes under tilbagesvaling i 6 timer. Vaskning med vand og filtrering blev gentaget, indtil der ikke kunne påvises nogen som helst chloridioner i vandfasen. Det således behandlede krystallinske silicat tørredes ved 120°C og calcineredes derpå ved 550°C i 6 timer. Derefter sattes der aluminiumoxid-sol svarende til 20 vægt% aluminiumoxid dertil, og den opnåede blanding ekstrusionsformedes. Det formede emne tørredes ved 120°C i 3 timer og derpå ved 550°C i 6 timer i luft.

(2) Methylering af toluen.

Den under (1) ovenfor fremstillede krystallinske silicat-katalysator anbragtes i et kvartsreaktionsrør. En blanding af toluen og methanol (molforhold:2:1) indførtes i kvartsreaktionsrøret og omsattes under følgende betingelser: tryk: atmosfæretryk, temperatur: 400°C, og LHSV: 1,0 h⁻¹. Resultaterne er anført i tabel 3.

Eksempel 4

Methyleringen af toluen udførtes på samme måde som under (2) i eksempel 3, bortset fra at reaktionstemperaturen ændredes til 450°C. Resultaterne er anført i tabel 3.

Eksempel 5

Methyleringen af toluen udførtes på samme måde som under (2) i eksempel 3, bortset fra at det molære forhold mellem toluen og methanol ændredes til 4:1. Resultaterne er anført i tabel 3.

Eksempel 6

Methyleringen af toluen udførtes på samme måde som i eksempel 5, bortset fra at reaktionstemperaturen ændredes til 450°C. Resultaterne er anført i tabel 3.

Tabel 3

Reaktionsbetingelser Toluen/methanol (molforhold)	Eksempel 3	Eksempel 4	Eksempel 5	Eksempel 6	Sammen- lignings- eksempel 1
	2:1 atmosfære- tryk	2:1 atmosfære- tryk	4:1 atmosfære- tryk	4:1 atmosfære- tryk	2:1 atmosfære- tryk
Tryk					
Temperatur (°C)	400	450	400	450	400
LHSV (h ⁻¹)	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0
Reaktionsresultater					
Omdannelse af toluen (%)	13,6	22,9	15,1	19,3	45,6
Selektivitet af xylen (%)	84,2	76,2	87,4	80,5	53,5
Sammensætning af xylen (%)					10
Para-xylen	49,3	49,4	52,3	54,9	24,4
Meta-xylen	16,1	21,5	14,5	18,3	53,1
Ortho-xylen	34,6	29,1	33,2	26,8	22,5

Sammenligningseksempel 1

Methyleringen af toluen udførtes på samme måde som under (2) i eksempel 3, bortset fra at der anvendtes ZSM-5 Zeolit som katalysator i stedet for det krystallinske silicat. Resultaterne er anført i tabel 3.

Eksempel 7

Omsætning af carbonhydrid.

Den under (1) i eksempel 3 fremstillede krystallinske silicat-katalysator anbragtes i en reaktor af strømningsstypen. En carbonhydrid-fødeblending med den i tabel 4 anførte sammensætning indførtes og omsattes under følgende betingelser: tryk: atmosfæretryk, temperatur: 400°C og WHSV: $0,8 \text{ h}^{-1}$. Resultaterne er anført i tabel 5.

Eksempel 8

15 (1) Fremstilling af katalysator.

Det i eksempel 1 fremstillede krystallinske silicatpulver underkastedes ionbytning to gange med 1 N ammoniumnitrat tilsat i en mængde på 5 ml pr. gram af pulveret, og derefter underkastedes det ionbytning to gange med 0,5 N zinksulfat tilsat i en mængde på 10 ml pr. gram af pulveret. Det således behandlede krystallinske silicatpulver vaskedes fuldstændigt med ionbyttet vand og frafiltreredes, og det tørredes derefter ved 120°C og calcineredes yderligere i luft ved 550°C i 6 timer. Til 25 det således calcinerede pulver sattes der aluminiumoxid-sol svarende til 20 vægt% aluminiumoxid, og den opnåede blanding ekstrusionsformedes. Det formede emne tørredes ved 120°C i 3 timer og calcineredes derefter i luft ved 550°C i 6 timer til opnåelse af en katalysator af zinkionbytter-typen. 30

(2) Omsætning af carbonhydrid.

Omsætningen af carbonhydrid udførtes på samme måde som i eksempel 7, bortset fra at reaktionstemperaturen ændredes til 450°C , og at der som katalysator anvendtes 35 den under (1) ovenfor fremstillede krystallinske silicat-katalysator. Resultaterne er angivet i tabel 5.

Eksempel 9

Omsætningen af carbonhydrid udførtes på samme måde som i eksempel 7, bortset fra at reaktionstrykket ændredes til 10 kg/cm² (ato). Resultaterne er anført i tabel 5.

Tabel 4

	<u>Komponent</u>	<u>Mængde (vægt%)</u>
	Ethan	0
	Ethylen	0
10	Propan	0,2
	Propylen	0,1
	iso-Butan	38,0
	n-Butan	6,7
	1-Buten	14,7
15	iso-Buten	33,4
	trans-2-Buten	
	cis-2-Buten	6,9
	C ₅ ⁺	0,1

Tabel 5

	<u>Eksempel 7</u>	<u>Eksempel 8</u>	<u>Eksempel 9</u>
20 Reaktionsbetingelser			
Tryk (kg cm ² , ato)	atmosfære-tryk	atmosfære-tryk	atmosfære-tryk
Temperatur (°C)	400	450	400
WHSV (h ⁻¹)	0,8	0,8	0,8
Omdannelse af buten(%)	69,4	80,8	100
25 Reaktionsresultater			
Methan (vægt%)	0,0	0,2	0,0
Ethan + Ethylen (vægt%)	0,4	1,5	0,3
C ₃ (propylen) (vægt%)	9,0 (7,0)	10,3 (8,3)	4,2 (1,8)
C ₄ (Buten) (vægt%)	77,9 (15,3)	78,9 (9,8)	65,5 (3,3)
30 C ₅ ⁺ (vægt%)	12,8	9,0	30,0
Aromatiske komponenter/C ₅ ⁺ (vægt%)	27,7	31,7	52,3

P A T E N T K R A V

Fremgangsmåde til fremstilling af et krystallinsk silicat ved omsætning af en vandig blanding indeholdende en siliciumoxidkilde, en aluminiumoxidkilde, en alkali-
metalkilde og en alkohol, k e n d e t e g n e t ved,
5 at man omsætter en vandig blanding indeholdende

- (a) siliciumoxidkilden,
- (b) aluminiumoxidkilden,
- (c) alkalimetalkilden og/eller en jordalkalime-
talkilde, og
- 10 (d) methanol

i følgende molforhold:

- siliciumoxid/aluminiumoxid $\geq 10/1$
- methanol/vand = 0,1/1 til 10/1
- methanol/siliciumoxid = 5/1 til 100/1
- 15 hydroxylgruppe/siliciumoxid = 0,01/1 til 0,5/1
- alkalimetal og/eller jordalkalimetal/siliciumoxid
= 0,1/1 til 3/1

ved en temperatur på fra 100 til 300°C, indtil det ønske-
de krystallinske silicat er dannet, hvilket krystallinske
20 silicat efter at være blevet calcineret i luft ved 550°C
har en sammensætning repræsenteret af den almene formel I

$$p(M_{2/n}O) \cdot (Al_2O_3) \cdot q(SiO_2) \quad I$$

hvor M betegner et alkalimetal og/eller jordalkalimetal,
25 n betegner atomvalensen for M, og p og q betegner molfor-
hold og er følgende:

$$0,3 \leq p \leq 3,0, \text{ og } q \geq 10,$$

og væsentligste røntgenstrålediffraktionsdata som anført
nedenfor:

30	<u>Gitterafstand d (10⁻⁸cm)</u>	<u>Relativ intensitet</u>
	10,89 ± 0,2	kraftig
	8,74 ± 0,2	middel
	6,94 ± 0,15	middel
	4,37 ± 0,1	meget kraftig
35	3,68 ± 0,1	meget kraftig
	3,62 ± 0,07	kraftig
	3,46 ± 0,07	kraftig
	2,52 ± 0,05	middel.

FIG. 1

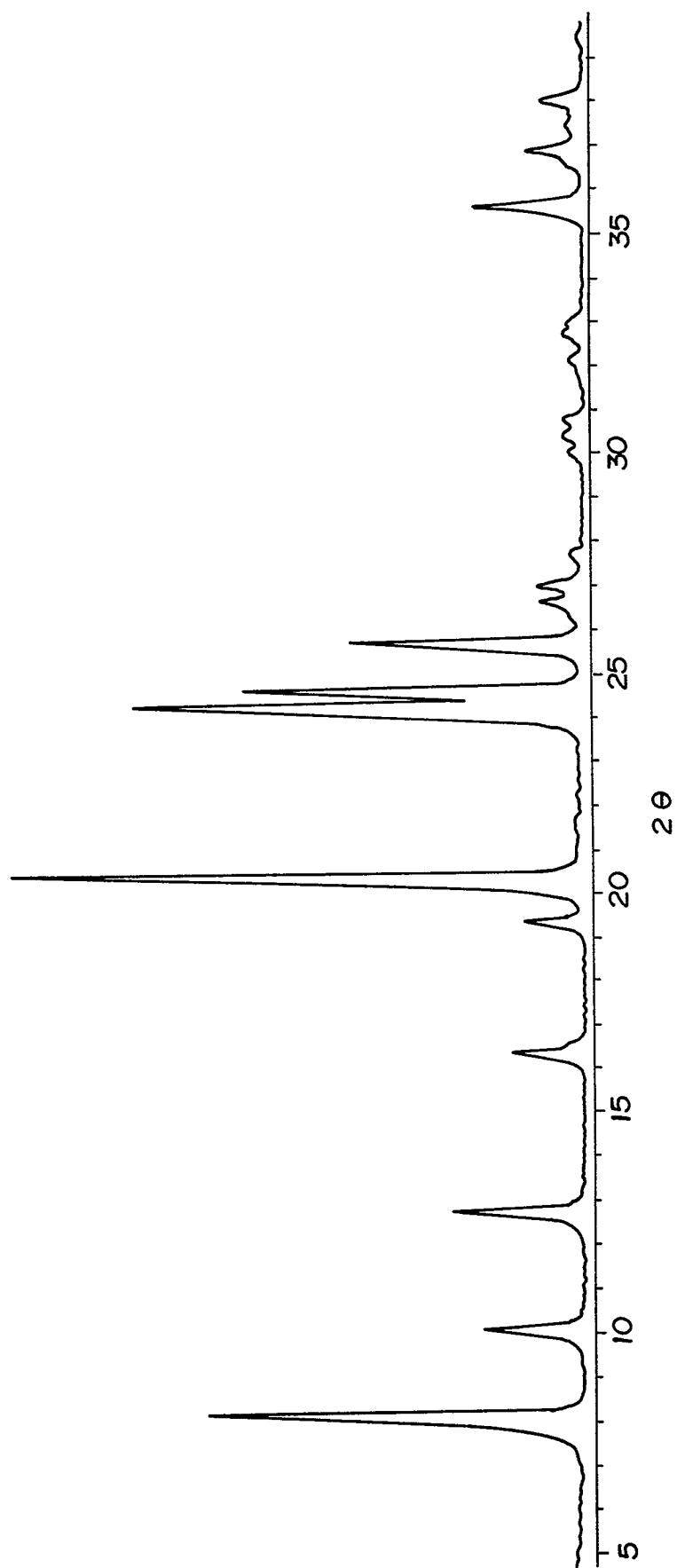


FIG. 2

