

ÖZET

BİR SOL-JEL REÇİNESİNİN HAZIRLANMASINA YÖNELİK YÖNTEM

- 5 Fenolik bileşikler ve aldehitlerden sol-jel reçinelerinin hazırlanmasına yönelik işlemler açılmaktadır. İşlem, depolama kararlılığı olan sıvı ara madde oluşturmak amacıyla hidroksillenmiş benzen ve katalizörün bir aldehitle reaksiyona sokulması içermektedir. Depolama kararlılığı olan ara madde, sonrasında ara maddenin bir hidroksillenmiş benzen ve katalizörler reaksiyona sokulmasıyla, daha sonra monolit veya partikül biçiminde sol-
- 10 jel reçine üretmek için bir işlemde kullanılmadan önce bir süre boyunca depolanabilmektedir.

İSTEMLER

1. Bir sol-jel reçinesinin hazırlanmasına yönelik yöntem olup, yöntem aşağıdakileri içermektedir:

5

bir reaksiyon kabına birinci hidroksillenmiş benzen ve bir birinci bazik katalizörün verilmesi;

birinci sıvı reaksiyon karışımının oluşturulması amacıyla reaksiyon kabına bir aldehidin verilmesi;

10 birinci hidroksillenmiş benzenin bir kısmını tüketmek için yeterli bir zaman aralığı

boyunca birinci sıvı reaksiyon karışımının reaksiyona sokulması;

bir viskoziteye sahip depolama kararlı olan bir sıvı ara madde oluşturmak amacıyla birinci sıvı reaksiyon karışımına ikinci asit katalizörünün ilave edilmesi;

15

burada depolama kararlı olan sıvı ara madde, 2°C ila 25°C arasındaki bir sıcaklıkta en az 3 gün boyunca kararlı olurken, 25°C'de Brookfield viskozitesi ile ölçüldüğü üzere, viskozitede %100'den daha az bir değişim sergilemektedir;

ikinci sıvı reaksiyon karışımını oluşturmak amacıyla depolama kararlı olan sıvı ara maddeye ikinci hidroksillenmiş benzenin verilmesi; ve

20

ikinci reaksiyon karışımının bir kaba aktarılması ve sol-jel reçinesi oluşturmak amacıyla 45°C ila 95°C'lik bir sıcaklıkta kürlenmesi;

veya aşağıdakileri içermektedir:

bir reaksiyon kabına birinci hidroksillenmiş benzen ve bir birinci bazik katalizörün verilmesi;

25

birinci sıvı reaksiyon karışımının oluşturulması amacıyla reaksiyon kabına bir aldehidin verilmesi;

birinci hidroksillenmiş benzenin bir kısmını tüketmek için yeterli bir zaman aralığı boyunca birinci sıvı reaksiyon karışımının reaksiyona sokulması;

30

bir viskoziteye sahip depolama kararlı olan bir sıvı ara madde oluşturmak amacıyla birinci reaksiyon karışımına ikinci asit katalizörünün ilave edilmesi;

burada depolama kararlı olan sıvı ara madde, 2°C ila 25°C arasındaki bir sıcaklıkta en az 3 gün boyunca kararlı olurken, 25°C'de Brookfield viskozitesi

ile ölçüldüğü üzere, viskozitede %100'den daha az bir değişim sergilemektedir;

ikinci sıvı reaksiyon karışımını oluşturmak amacıyla depolama kararlı olan sıvı ara maddeye ikinci hidroksillenmiş benzenin verilmesi;

35

burada birinci hidroksillenmiş benzen ve ikinci hidroksillenmiş benzenin toplam miktarının %85 mol kadarlık kısmını fenol içermektedir; ve parçacık biçimde sol-jel reçinesi oluşturmak için yeterli olan zaman aralığı boyunca ikinci sulu reaksiyon karışımının çalkalanması.

5

2. Birinci hidroksillenmiş benzenin fenol içerdiği ve ikinci hidroksillenmiş benzenin rezorsinol içerdiği istem 1'e göre yöntem.

10

3. Birinci hidroksillenmiş benzenin esasen fenolden oluştuğu ve ikinci hidroksillenmiş benzenin esasen rezorsinolden oluştuğu istem 2'ye göre yöntem.

4. Aldehidin %20 ila %75 oranında aldehid tüketmek için yeterli bir zaman aralığı boyunca reaksiyonun durdurulmasını kontrol etmek için verildiği istem 1'e göre yöntem.

15

5. Birinci ve ikinci hidroksillenmiş benzenin toplam aldehite olan molar oranının 0.20 ila 0.75 olduğu istem 1'e göre yöntem.

6. Sol-jel reçinesinin 50°C ila 100°C'lik bir sıcaklıkta kürlendiği istem 1'e göre yöntem.

20

7. Askıda kalan sulu reaksiyon besiyerinden sol-jel reçinesinin izole edilmesi adından yoksun olan istem 1'e göre yöntem.

8. Birbiriyle karışmaz veya çözünmez reaksiyon fazlarından yoksun olan istem 1'e göre yöntem.

25

TARİFNAME

BİR SOL-JEL REÇİNESİNİN HAZIRLANMASINA YÖNELİK YÖNTEM

5 BULUŞUN ARKA PLANI

TEKNİK ALAN

10 Buluş, reçinelerin üretilmesiyle ilgilidir. Buluş, özellikle, sol-jel reçinelerinin üretilmesiyle ilgilidir.

ÖNCEKİ TEKNİK

15 Sol-jel reçinelerinin üretimi, polimerlerin jelleşmesi sırasında denetim eksikliğinden dolayı zor olabilmektedir. Bir sol-jel üretmek için gerekli olan polimerizasyon, daha fazla işlenmesi zor olan bir biçime yol açabilmektedir. Fenollerin ve aldehidlerin konvansiyonel sol-jel polimerizasyonlarında, mevcut teknolojinin sol-jelin kapsamlı idare gerektiren monolit şeklinde oluşturulmasını gerektirmesinden dolayı küçük partilerin yapılması sıkla
20 gerekmektedir. Bu, ekonominin sıkla ölçüsünde bulunduğu ticari uygulamalarda arzu edilebilir olmayabilmektedir. CN 14627323 sayılı Patent Dokümanı aldehidin iki fenolle yoğunlaştırılmasıyla kompozit karbon aerojellerin hazırlanmasını açıklamaktadır. Bu doküman, özellikle karbon aerojelin karbon yoğunluğunun, karıştırılan kresol ve formaldehidin polimerizasyon işleminde katalizörün konsantrasyonu ve ara rezorsinol miktarını
25 değiştirilmesi vasıfıyla kontrol edilmesini ve ayarlanmasını açıklamaktadır. Spesifik yüzey alanı ve gözenek boyutu dağılımı, yani bir solüsyon haline gelen belirli orandaki ağaç karışık kresol, rezorsinol, formaldehid ve uygun miktarda katalizöre göre solüsyon, ıslak jel elde etmek için sol-jel işleminden sonra eşit bir şekilde karıştırılmaktadır. Islak jeller, aseton solvent ile değiştirilmiş ve atmosferik basınçta kurutulmuş ve bunu takiben, farklı
30 karakteristik parametrelere sahip kömür jelleri hazırlamak amacıyla inert koşullar altında kömürleştirme işlemi yapılmıştır. Kömürleştirme işlemi, ıslak jellerin 900°C'ye ısıtılması ve daha sonra bu sıcaklığın 60 dakika boyunca korunmasını gerektirmektedir. Kömürleştirilmiş ıslak jellerin parçacık biçimde olduğu tarif edilmemiştir. US 2004/0241237 sayılı US Patent Dokümanı bir jel oluşturmak için bir solventte hidrosillenmiş benzenin aldehidle karıştırılmasını öneren, belirlenmiş gözenek dokusuna sahip bir organik jelin hazırlanmasına
35 yönelik bir yöntemi açıklamakta, söz konusu yöntem, jelin dokusunun, başlangıç

malzemesinin pH deęerinin ayarlanması aracılıyla düzenlenmesi ile karakterize edilmektedir. Bu doküman, başlangıç malzemesine metal tuzunun ilave edilmesi ile karakterize edilen, belirlenen gözenekli dokuya sahip organik jelin hazırlanmasına yönelik yöntemi açıklamaktadır. Mevcut buluşun metal tuzu, doğrudan hidroksillenmiş benzenle veya dolaylı olarak kompleks oluşturma maddesi ile yapılan kompleks oluşturma işlemi aracılıyla çözülebilir hale getirilmekte veya seçilen bir solvent içinde hidroksillenmiş benzen-aldehid solüsyonunda çözülebilmektedir. Bu işlem aracılıyla üretilen gözenekli karbon malzemeler, 1 mm kalınlığındaki plaka gibi monolitik malzeme olmakta ve parçacık biçimde oluşturulmamaktadır. JP 2007/254686 sayılı Patent Dokümanı, reaksiyon şablonları olarak katyonik sürfaktantlar aracılıyla oluşturulan miseller veya veziküller kullanılarak polimer partiküllerinin oluşturulmasını açıklamaktadır. Bunun aksine mevcut buluş, parçacık biçimdeki sol-jel reçineleri oluşturmak amacıyla çalkalama araçları kullanmaktadır. Bu doküman, formaldehid ilave edilirken rezorsinol, sodyum hidroksit katalizörü, setiltrimetilamonyum bromür sürfaktantı, mesitilen (hidrofobik moleküller), terbütanol (amfilik moleküller) ve su solüsyonunun karıştırılması ve daha sonra solüsyonun 24 saat boyunca 90°C'ye ısıtılması işlemini açıklamaktadır. Bu işlem, istenen ürünü üretmek amacıyla reaksiyon karışımını oluşturmak için, mevcut buluşta bulunmayan bir sürfaktant ve aynı zamanda diğer bileşenlerin mevcut olmasını gerektirmektedir. Daha sonra solüsyon, bir katı ürün oluşturmak için santrifüjlenmekte, yıkanmakta ve kurutulmaktadır. Buna karşın mevcut buluş, çalkalama işlemi vasıtasıyla bir parçacık biçimindeki sol-jel reçinesi oluşturmaktadır.

Teknikte büyük fenolik aldehid sol-jel reçine partilerinin üretilebilmesi arzu edilebilmektedir. Özellikle teknikte bu tür büyük partilerin yapılması arzu edilmektedir. İmalat, paketleme ve icra etmek için sol-jelin monolit biçimden daha uygun biçime dönüştürülmesine yönelik yeni ve gelişmiş yöntemlere yönelik teknikte bir ihtiyaç bulunmaya devam etmektedir. Mevcut buluş, bu ihtiyaçları karşılamakta ve ilave ilgili avantajlar sağlamaktadır.

BULUŞUN KISA AÇIKLAMASI

Bir yönde, buluş şunları içeren bir sol-jelin hazırlanmasına yönelik bir yöntemdir: bir katalize edilmiş fenol oluşturmak amacıyla bir hidroksillenmiş benzenin (örneğin fenol, katekol, rezorsinol, hidrokinon ve floroglusinol), katalizör ve opsiyonel olarak suyun bir reaktöre verilmesi; reaktörün çalkalama işlemiyle bir aldehite verilmesi; bir sol-jel reçine prekürsörü oluşturmak amacıyla hidroksillenmiş benzenin bir kısmını tüketmek için yeterli olan bir süre boyunca kontrollü reaksiyonun korunması; reçine prekürsörünün reaktörden bir karışımını

içine aktarılmasında ve sol-jel partikülleri oluşturmak için yeterli bir süre boyunca reçine prekürsörünün çalkalanması

Diğer yönde, buluş şunları içeren bir sol-jelin hazırlanmasına yönelik bir yöntemdir: 5 hidroksillenmiş benzen, katalizör ve opsiyonel olarak suyun bir karışımına içine yerleştirilmesi; karışımına içine, çalkalama işlemiyle bir aldehidin verilmesi; ve sol-jel partikülleri oluşturmak için yeterli bir süre boyunca kontrollü reaksiyonun korunması

Diğer yönde buluş, şunları içeren bir sol-jelin hazırlanmasına yönelik bir yöntemdir: 10 hidroksillenmiş benzer ve birinci katalizörün bir reaksiyon kabına yerleştirilmesi; birinci sıvı reaksiyon karışımı oluşturmak amacıyla reaksiyon kabına bir aldehidin verilmesi; birinci hidroksillenmiş benzenin bir kısmını tüketmek için yeterli bir süre boyunca birinci sıvı reaksiyon karışımına reaksiyona sokulması; bir viskoziteye sahip depolama kararlılığı olan sıvı ara madde oluşturmak amacıyla birinci sıvı reaksiyon karışımına ikinci katalizörün ilave 15 edilmesi; ikinci sıvı reaksiyon karışımı oluşturmak amacıyla depolama kararlılığı olan sıvı ara maddeye ikinci hidroksillenmiş benzenin verilmesi; ve ikinci reaksiyon karışımına bir kaba aktarılmasında ve sol-jel reçine oluşturmak için 45 ila 90°C'lik bir sıcaklıkta kürlenmesi.

Diğer yönde, buluş şunları içeren bir sol-jelin hazırlanmasına yönelik bir yöntemdir: 20 hidroksillenmiş benzer ve birinci katalizörün bir reaksiyon kabına yerleştirilmesi; birinci sıvı reaksiyon karışımı oluşturmak amacıyla reaksiyon kabına bir aldehidin verilmesi; birinci hidroksillenmiş benzenin bir kısmını tüketmek için yeterli bir süre boyunca birinci reaksiyon karışımına reaksiyona sokulması; bir viskoziteye sahip depolama kararlılığı olan sıvı ara madde oluşturmak amacıyla birinci reaksiyon karışımına ikinci katalizörün ilave edilmesi; ikinci 25 sıvı reaksiyon karışımı oluşturmak amacıyla depolama kararlılığı olan sıvı ara maddeye ikinci hidroksillenmiş benzenin verilmesi; ve parçacıklı biçimde sol-jel reçinesi oluşturmak için yeterli bir süre boyunca ikinci sıvı reaksiyon karışımına çalkalanması

Yukarıdaki yöntemlerde, depolama kararlılığı olan sıvı ara madde, 25°C'de Brookfield 30 viskozitesi ile ölçüldüğü gibi viskozitede %100'den daha az bir değişim sergilerken, 2°C ila 25°C arasındaki bir sıcaklıkta en az 3 gün boyunca kararlıdır

Diğer yönde, yukarıdaki yöntemlerde, birinci hidroksillenmiş benzen, fenol içermekte ve ikinci 35 hidroksillenmiş benzen rezorsinol içermekte veya birinci hidroksillenmiş benzen, esasen fenolden oluşmakta ve ikinci hidroksillenmiş benzen ise esasen rezorsinolden oluşmaktadır

Diğer yönde, yukarıdaki yöntemlerde, birinci hidroksillenmiş benzen ile ikinci hidroksillenmiş benzenin toplam miktarının %85 mol kısmında fenol içermektedir.

5 Yukarıdaki yöntemlerde, birinci katalizör, bir bazik katalizör olmakta ve ikinci katalizör ise bir asit katalizörü olmaktadır

Diğer yönde, yukarıdaki yöntemlerde, aldehid, %20 ila %75 oranında aldehid tüketmek için yeterli olan bir süre boyunca, reaksiyonun durdurulmasını kontrol etmek için verilmekte; birinci ve ikinci hidroksillenmiş toplam benzenin aldehite olan molar oranı 0.20 ila 0.75 olmakta; ve/veya sol-jel reçinesi, 50°C ila 100°C'lik bir sıcaklıkta kürlenmektedir.

Diğer yönde, yukarıdaki yöntemler, aşırı kalan sızdıran reaksiyon besiyerinden sol-jel reçinesinin izole edilmesi adından yoksun olmakta veya birbiriyle karıştıramaz veya çözünmez olan reaksiyon fazlarından yoksun olmaktadır

15 Diğer yönde, sol-jel reçinesinin parçacık biçimde hazırlanması yukarıdaki yöntemlerde, ikinci sızdıran reaksiyon karışımı 0.5 mm ila 20 mm'lik bir ortalama partikül boyutuna sahip sol-jel reçinesi üretmek için yeterli olan koşullar altında çalkalanmaktadır. Diğer yönde, ikinci sızdıran reaksiyon karışımı 25°C ile 120°C arasındaki bir sıcaklıkta çalkalanmaktadır

20

ŞEKİLLERİN KISA AÇIKLAMASI

Mevcut buluşun avantajları ve ilave yönleri, teknikte uzman kişiler tarafından halihazırda takdir edilecek ve ekteki şekillerle birlikte ele alındığında, aşağıdaki ayrıntıya atıfta bulunularak daha iyi anlaşılacaktır. Şekillerde:

25

Şekil 1, buluşun iki adımı işlem yöntemini gösteren bir akış çizelgesi olmakta; bu işlem, bir monolite yol açmamakta ve minimum ek idare gerektirmektedir.

30 **Şekil 2**, buluşun bir adımı işleminin yöntemini gösteren bir akış çizelgesi olmakta; bu işlem, bir monolite yol açmamakta ve minimum ek idare gerektirmektedir.

Şekil 3, fiilen yapılan sonraki yoğunlaştırma işlemini çözümlen, buluşun tamamıyla karıştırılarda hazırlanması yöntemini gösteren bir akış çizelgesi olmakta; bu alternatif tek adımı işlem yapılandırılması bir monolite yol açmamakta ve minimum ek idare

35

gerektirmektedir.

Şekil 4, ilk olarak bir ara fazın hazırlanması ve bunu takiben rezorsinolün ilave edildiği buluşun iki adımlı işlem yöntemini gösteren bir akış çizelgesi olmakta; bu işlem, bir monolite yol açmamakta ve minimum ek idare gerektirmektedir.

Şekil 5, Örnek 2c'deki belirli fiziksel özellikleri gösteren bir grafikdir.

Şekil 6, Örnek 4a'daki belirli fiziksel özellikleri gösteren bir grafikdir.

Şekil 7, Örnek 4b'deki belirli fiziksel özellikleri gösteren bir grafikdir.

Şekil 8, Örnek 4c'deki belirli fiziksel özellikleri gösteren bir grafikdir.

TERCİH EDİLEN YAPILANDIRMALARIN AÇIKLAMASI

Mevcut başvurunun amaçları doğrultusunda, aşağıdaki terimler, aşağıdaki gibi tanımlanmaktadır.

"Asit" terimi, bir solüsyonun pH değerini düşürme kabiliyetine sahip herhangi bir maddeyi ifade etmektedir.

"Baz" terimi, bir solüsyonun pH değerini yükseltme kabiliyetine sahip herhangi bir maddeyi ifade etmektedir.

"Kömürleştirme" ve "pirolize etme" terimi, bir inert atmosferde (örneğin argon veya azot) veya vakumlu bir şekilde kömürleştirmede bekleme sıcaklığında karbon ihtiva eden maddenin ayrışması ve böylelikle işlemin sonunda toplanan hedeflenen malzemenin esasen karbon olduğu işlemi ifade etmektedir.

"Katalizör" terimi, reaksiyonun hızını değiştiren bir malzemeyi ifade etmektedir.

"Granüler jel" terimi, sol-jelin ilaveten çalkalama işlemiyle, granüller haline getirildiği molekül ağırlığına yoğunlaştırılmış polimer jelin alt sınıfları ifade etmektedir.

“Monolit” terimi, doğasğeređi parçacıkılmayan katıüç boyutlu bir yapııfade etmektedir.

“Monomer” ve/veya “Polimer prekürsörü” terimi, polimerin hazılanmasında kullanılan bileşikleri ifade etmektedir.

5

“Polimer” terimi, uzun zincirli moleküller oluşturmak amacıyla monomerlerin birbirine ilave edildiđi bir maddeyi ifade etmektedir.

10 “Gözenek” terimi, yüzeydeki bir açıklıđıveya çöküntüyü veya bir karbon malzemedeki tüneli ifade etmektedir.

“Gözenek yapıı” terimi, aktif karbon gibi bir malzemenin içindeki iç gözeneklerin yüzeyinin yapıııfade etmektedir. Gözenek yapııı bileşenleri, gözenek boyutunu, gözenek hacmini, yüzey alanııyoğunluđu, gözenek boyut dağılımııve gözenek uzunluđunu içermektedir.

15

“Yüzey alanı” terimi, basınca göre katı malzemenin içindeki gaz moleküllerinin adsorpsiyonunu ölçmek suretiyle yüzey alanııdeđerlendiren BET tekniđi aracılıyla sıklıkla ölçülebilir olan bir maddenin toplam spesifik yüzey alanıııfade etmektedir. Numunenin gözenekli yapııı Micromeritics TriStar II 3020’yi kullanan nitrojen adsorpsiyon yöntemi aracılıyla ölçülmüştür. BET yüzey alanııBET (Brauner-Emmett-Teller) kuramııkullanılarak hesaplanmııı. Toplam gözenek hacmi, 0.99’luk bađıbasııçtaki desorpsiyon eş sıcaklık eğrisine dayanılarak hesaplanmııı.

20

“Sinterleme” terimi, malzemenin daha büyük birimler halinde toplanma eğilimini ifade etmekte, burada bu malzemenin işlenmesi zor hale gelebilmekte ve elle veya mekanik araçlar aracılıyla parçalanmasıveya öğütülmesi gerekmektedir.

25

Mevcut buluş, polimer jellerle ve bu jelleri üretmek için kullanılan reçinelerin imal edilmesine yönelik yöntemlerle ilgilidir. Daha spesifik olarak, mevcut buluş, hidroksillenmiş benzenlerden (örneğin fenol, katekol, rezorsinol, hidrokinon ve floroglukinol) ve aldehitlerden (örneğin formaldehid, furfural, glutaraldehid ve glioksal) hazılanan reçinelerle ilgilidir. Bu reaksiyon, bir asit ve/veya bir bazıı mevcudiyetinde yapılmaktadır.

30

Fenol-formaldehid reaksiyonlarından (veya önceden tarif edildiđi gibi benzerinden) hazılanan fenolik reçineler vakasında, bir polimer jelin oluşturulmasına yönelik polimerizasyon işlemi, bir

35

katalizörün kullanılmasıyla ve polimeri üretmek için yeterli bir süre boyunca polimer prekürsörlerinin reaksiyona sokulmasıyla gerçekleştirilmektedir. Bu süre, katalizöre, katalizör miktarına, sıcaklığa ve kullanılmakta olan monomere bağlı olarak değişiklik gösterecektir.

5

Reçine jellerinin üretilmesine yönelik tipik olarak rapor edilen yöntemler, prekürsör malzemelerinden oluşan bir solüsyonun bir kaba dağıtılması ve monolit halinde jelleşmesine izin verilmesini veya reaktant prekürsörlerin partikül oluşturmak için jelleştiği bir süspansiyon sübesiyerine dağıtılması içermektedir.

10

Katçelin örneğinin partiküller veya granüller gibi kolaylıkla kullanılabilirdiği ve işlenebildiği bir biçimde olması arzu edilmektedir. Monolitik malzemedeki polimer jel partiküllerinin oluşturulmasına yönelik teknikler, taşlama, öğütme, elekten geçirme veya bunların kombinasyonları gibi manuel veya mekanik boyut küçültme araçları içermektedir. Valsli, boncuklu ve bilyalı değirmen gibi çeşitli değirmen tipleri ve döner kollar ve teknikte bilinen benzer partikül oluşturma ekipmanları kullanılabilir. Elekten geçirilen partiküller, daha sonra sızdırmazlığı sağlanmış kaplarda ihtiyaç duyulana dek depolanmaktadır. Öğütme işlemi, maliyetli olabilmekte ve oluşan tozla ilgili doğal bir sorunu bulunmaktadır.

15

İstenen partikül boyutuna ve partikül boyut dağılımına sahip reçine jellerinin üretilmesine yönelik diğer yöntemler, bununla sınırlı olmamak üzere, dispersiyon, emülsiyon veya süspansiyonlu polimerizasyon yöntemlerini içermektedir. Bu tür yöntemler, askıda kalan sübesiyerinden jel partiküllerinin izole edilmesi için bir ayrıştırma adımı gerektirmekte ve kontrol edilmesi zor olan bir partikül boyut dağılımına eğilimli olabilmektedir.

20

İstenen partikül boyutuna ve partikül boyut dağılımına sahip jelleşmiş partiküllerin yapımına yönelik bir geçerli imalat işleminin bu ve diğer sınırlamaların üstesinden gelmesi gerekmektedir.

25

Bir yönde, mevcut buluş, bir sol-jel reaksiyonundan reçine jel partiküllerinin üretilmesine yönelik bir işlemle ilgili olmakta, burada prekürsör reaktantların taşlama veya öğütme işlemine ihtiyaç duyulmaksızın istenen partikül boyutuna veya partikül boyut dağılımına sahip jel granüllerin üretilmesi amacıyla, süzgeçten katı fazaya geçiş sırasında çalkalanmaktadır. Mevcut buluşun diğer yönünde, istenen partiküller ve partikül boyutundaki jel granüller, birbiriyle veya bir taşıyıcı akışkanlarla karıştırılmaz veya çözünmez olan reaksiyon fazları

30

kullanılmadan üretilmektedir. Mevcut buluşun diğer yönünde, istenen partiküller ve partikül boyutundaki jel granüller, katı maddelerin sıvıdan ayrıştırılmasına yönelik bir adıma ihtiyaç duyulmaksızın üretilmektedir. Diğer yapılandırılmada, jel granüller, jel granüllerin askıda kalan sıvı besiyerinden izole edilmesine ihtiyaç duyulmaksızın ve partikül boyut dağılımında daha iyi kontrol etmek amacıyla malzemenin geri dönüşümünün sağlanmasına ihtiyaç duyulmaksızın üretilmektedir.

Diğer yönde, mevcut buluş, sol-jel reaksiyonundan istenen boyuttaki reçine jel partiküllerinin veya monolit reçine jelin üretilmesine yönelik bir işlemle ilgili olmakta, burada prekürsör reaktantlar, başlangıçta, depolama kararlılığı olan sıvılara madde oluşturmaktadır. Bir yönde, sıvılara maddenin, zamana oluşan viskozite aracılığıyla ölçüldüğü gibi depolama kararlılığı bulunmakta ve viskozite, depolama sıcaklığına, katı madde miktarına, pH değerine ve teknikte bilinen diğer faktörlere bağlı olmaktadır. Diğer yönde, sıvılara madde, rezorsinol içermemektedir. Diğer yönde, sıvılara madde, oda sıcaklığında (yani 25°C'de) depolandığında en az 3 gün veya en az 10 gün veya en az 14 gün veya en az 28 gün veya en az 40 gün boyunca, 25°C'deki Brookfield viskozitesi tarafından ölçüldüğü gibi, viskozitede %100'den daha az veya %0, veya %40 veya %20 oranında bir değişim sergilemektedir. Diğer yönde, sıvılara madde, 2°C ila 25°C arasındaki bir sıcaklıkta depolandığında, en az 3 gün veya en az 10 gün veya en az 14 gün veya en az 28 gün veya en az 40 gün boyunca, 25°C'deki Brookfield viskozitesi tarafından ölçüldüğü gibi, viskozitede %30 veya %20 veya %10'dan daha az bir değişim sergilemektedir.

Sol-Jel Granül Hazırlanışı

Sol-jeller, tek adımlı işlemde veya iki adımlı işlemde veya depolama kararlılığı olan sıvılara madde kullanan bir işlemde hazırlanabilmektedir. İki adımlı işlem, bir karışım oluşturmak amacıyla bir reaktöre hidroksillenmiş benzen (örneğin fenol, katekol, rezorsinol, hidrokinon ve floroglukinol), katalizör ve opsiyonel olarak suyun verilmesi; karışım, çalkalama işlemiyle bir aldehidin verilmesi; sıvı reçine prekürsörü oluşturmak amacıyla tercihen hidroksillenmiş benzenin en az %60'ını tüketmek için yeterli bir süre boyunca kontrollü reaksiyonun korunması; ön-reaktörden gelen reçine prekürsörünün bir karıştırıcı içine aktarılması ve sol-jel granülleri oluşturmak için yeterli bir sıcaklıkta ve süre boyunca reçine prekürsörünün çalkalanması içermektedir.

Tek adımlı işlem, hidroksillenmiş benzen, katalizör ve opsiyonel olarak suyun bir karıştırıcı

5 içine verilmesi; karışımın içine çalkalama işlemiyle bir aldehidin verilmesi; ve bir sol-jel oluşturmak için yeterli bir süre boyunca kontrollü reaksiyonun korunmasını içermektedir. Bu örneklerin her birinde, malzemenin jel (polimer jel) haline gelene dek polimerize olmasına izin verilmekte ve granül şekline sahip olan partiküllerin oluşmasına dek ilaveten karıştırılmaktadır. Bu granüller, daha sonra, toplanmak için yeterli "yüzey yapışkanlığı" barındırmayacak ölçüde polimerize olana dek karıştırılmaktadır. Bu aşama, paketleme, nakliye ve depolama sırasında hiçbir sinterlemenin olmamasının sağlanmasına yöneliktir. Bu şekilde yapılan malzemenin imalat ekipmanından ve paketlemeden serbest bir şekilde geçtiği keşfedilmiştir. Bu, elle veya mekanik araçlar vasıtasıyla yapılan mevcut parçalama uygulamalarından ortadan kaldırılmaktadır.

15 Depolama kararıyla oluşan sıvı ara madde kullanan işlem, bir reaksiyon kabına birinci hidroksillenmiş benzenin ve katalizörün verilmesi; depolama kararıyla oluşan sıvı ara madde oluşturmak amacıyla reaksiyon kabına bir aldehidin verilmesi; %20 ila %75 oranında aldehidin tüketilmesi için yeterli olan bir süre boyunca birinci reaksiyon karışımının reaksiyona sokulmasını içermektedir. Depolama kararıyla oluşan ara madde, daha sonra monolit veya partikül biçiminde sol-jel reçinesi hazırlanmasına yönelik bir işlemde kullanılmadan önce bir süre boyunca depolanabilmektedir.

20 Aynı zamanda, depolama kararıyla oluşan sıvı ara madde kullanan işlem, fenol içeren, esasen fenolden oluşan ve/veya rezorsinol içermeyen birinci hidroksillenmiş benzenin ve bir katalizörün bir reaksiyon kabına verilmesi; birinci sıvı reaksiyon karışımını oluşturmak amacıyla reaksiyon kabına bir aldehidin verilmesi; asit ilave edilerek bir depolama kararıyla oluşan sıvı ara madde oluşturmak amacıyla %20 ila %75 oranında aldehidin tüketilmesi için yeterli olan bir süre boyunca birinci reaksiyon karışımının reaksiyona sokulmasını içermektedir. Depolama kararıyla oluşan ara madde, daha sonra rezorsinol içeren veya esasen rezorsinolden oluşan ikinci hidroksillenmiş benzen kullanılarak monolit veya partikül biçimindeki sol-jel reçinesinin hazırlanmasına yönelik bir işlemde kullanılmadan önce bir süre boyunca depolanabilmektedir. Rezorsinol-aldehid reaksiyonundan fenol-aldehid reaksiyonunun ayrıştırılmasına serbest fenol miktarının azaltılmasına ve istenmeyen derecede yüksek molekül ağırlıklı bileşenlere yol açan fenolün aldehidle ve rezorsinolün aldehidle olan rekabetçi reaksiyonlarının azaltılmasına avantajına sahip olmaktadır. Artık rezorsinol, reaksiyon sıcaklıklarında daha iyi kontrol etmek amacıyla çok daha düşük sıcaklıkta ilave edilebilmektedir.

35 Depolama kararıyla oluşan sıvı ara madde kullanan işlem, tarif edildiği gibi, aynı zamanda daha

yüksek maliyetli rezorsinol kışın daha düşük maliyetli fenol ile değiştirilmesi avantaj sağlamaktadır. Örneğin, sol-jel reçinelerinin hazırlanmasında yönelik önceki tekniğe ait yöntemlerde, kullanılan hidroksillenmiş benzen, tamamen rezorsinolden oluşmaktadır. Mevcut buluş, bu tür konvansiyonel yöntemlerde kullanılan %85 mol kadar, veya %25 mol ila %85 mol, veya %40 mol ila %80 mol, veya %65 mol ila %75 mol rezorsinolün daha düşük maliyetli fenolle değiştirilmesine olanak sağlarken sol-jel reçinesinin özelliklerinin bir olumlu dengesini korumaktadır. Buna ek olarak, üretilen ara madde, nihai sol-jel reçine ürünlerine yönelik ihtiyaç arttıkça küçük veya büyük miktarlarda, monolit veya parçacık biçimde kullanılabilir.

10 Mevcut buluşun yöntemleriyle kullanılan katalizörler, asidik ve/veya bazik olabilmektedir. Çoğu uygulama yapıldığında, hidroksillenmiş benzen ve katalizör, bir solventin mevcudiyetinde bir reaktörün içine yüklenecektir. Çoğu yapıldığında solvent, su olacaktır. Mevcut buluşun yöntemleriyle kullanılan diğer solventler, bulunla sınırlanmamak üzere, 15 etanol, metanol ve izopropil alkolü içermektedir. Mevcut buluşun yöntemlerinin uygulamasında, aldehid, hidroksillenmiş benzenin veya hidroksillenmiş benzen karışımına içine verilmektedir. Teknikte uzman kişiler tarafından fenolik reçinelerin yapımında kullanılan olduğu bilinen herhangi aldehid, mevcut buluşun yöntemiyle kullanılabilir. Bazı yapıldıklarında, %10 ila %70, %20 ila %60 veya %20 ila %40 veya %40 ila %60 20 oranlarındaki hidroksillenmiş benzen bileşenleri ve aldehid bileşenleri miktarlarına bağlı olarak, hesaplanan katı madde içeriği elde etmek amacıyla yeterli miktarda su, reaksiyon karışımına ilave edilmektedir.

Aldehidin hidroksillenmiş benzen veya hidroksillenmiş benzen karışımına verilmesi sırasında, 25 çalkalama işlemi aracılığıyla verilmektedir. Birçok yapıldığında bu çalkalama işlemi, karışımın sonucudur. Karışımaya ek olarak, çalkalama işlemi, teknikte uzman kişiler tarafından kullanılan olduğu bilinen herhangi bir araç aracılığıyla gerçekleştirilebilmektedir. Mevcut buluşun yöntemleri kullanarak bir sol-jel reçinesinin hazırlanması işlemi sırasında, reaksiyon kütesinin kıvamı neredeyse su kadar düşük viskoziteden çok ağır hamur kıvamına 30 ve son olarak ayrık partiküller veya peletler haline geçebilmektedir. Bir yapıldığında, hidroksillenmiş benzen bileşenlerinin aldehid bileşenlerine olan molar oranı 0.20 (yani 1:5) ila 0.75 (yani 1:1,3), 0.35 (yani 1:2,9) ila 0.65 (yani 1:1,54), 0.40 (yani 1:2,5) ila 0.60 (yani 1:1,67) veya 0.45 (yani 1:2,2) ila 0.55 (yani 1:1,82) olmaktadır.

35 Mevcut buluşun yöntemlerinin bazı yapıldıklarında, konvansiyonel karışımaya yeterli

olabilmektedir. Çalkalayıcı tasarımı, istenen partikül boyutunun oluşmasını yardımcı olabilmekte ve aynı zamanda reaksiyon ilerledikçe güç gereksinimlerini asgari seviyeye indirmektedir. Ancak, diğer yapılandırmalarda, mevcut buluşun için gerekli olan çalkalamanın basit karıştırma ile elde edilmesi çok zor olabilmektedir. Bu yapılandırmalarda, yoğurma ve hatta ekstrüzyon işlemlerine başvurulması daha arzu edilebilir olabilmektedir. Aynı zamanda bu çalkalama yöntemlerinin kombinasyonları da kullanılabilir olabilmektedir.

En az bir çalkalama faydası, reaksiyondan gelen ısı reaksiyon kütlelerinin tamamında eşit bir şekilde dağılmasıdır. Mevcut buluşun yöntemlerinin uygulamasında, çalkalama işlemi, karıştırıcı veya reaktörün içinde ısı istenmeyen seviyelerde birikmesinden önceki herhangi bir noktada başlatılabilir olabilmektedir.

Mevcut buluşun yönteminin bazı yapılandırmalarında, aldehidin ilave edilme hızı, ısı birikmesinin kontrol edilmesine yönelik bir araç olarak kullanılmaktadır. Bu süre, kullanılan reaktantların fonksiyonu ve kullanılan karıştırıcı ve reaktörün özellikleri şeklinde değişiklik gösterebilmektedir.

Birçok yapılandırmada reaksiyon kütlelerinin sıcaklığının karıştırıcı ve reaktör içindeki sıcaklığının 90°C veya daha az bir sıcaklıkta tutulması arzu edilebilmektedir. Genellikle, reaksiyon kütlelerinin sıcaklığının 25°C ila 120°C'de tutulması arzu edilebilir. Bazı yapılandırmalarda, sıcaklık aralığı 40°C ila 65°C'dir. Ancak mevcut buluşun yöntemlerinin uygulamasında, istenen özelliklere sahip bir bileşimi oluşturan herhangi bir sıcaklık kullanılabilir olabilmektedir.

Sol-jel reçinenin üretimi sırasında, reaksiyon kütlelerinin sıcaklığı, jelleşme yapısını ve gözenek yapısını etkilemek için kontrol edilmektedir. En az bir yapılandırmada, bu sıcaklık kontrolü, soğutma ceketini, soğutma serpantini veya kullanılan reaktör veya karıştırıcının soğutulmasını yönelik diğer yöntemin kullanılmasıyla gerçekleştirilmektedir. Bu yapılandırmaların birçoğunda, soğutma ceketini veya soğutma serpantininin içinde kullanılan akışkan, su veya hava olacaktır. Diğer akışkanlar kullanılabilir ve yine mevcut buluşun istemlerinin kapsamı dahilinde olabilmektedir.

Bazen, bir sol-jel reçenesinin üretimi sırasında reaksiyonun sonunda reaksiyon kütlelerinin sıcaklığının artmasını izin verilmesi arzu edilebilmektedir. Bu maksatla, mevcut buluşun yönteminin bazı yapılandırmalarında, reaksiyon kütlelerinin sıcaklığı, en az %70 veya %70 ila

%99 oranında hidroksillenmiş benzenin tüketilmesine dek kontrol edilmektedir. O noktadan sonra reaksiyon kütlesinin daha fazla soğutulmadan istenilen dengeye ulaşmasına izin verilmektedir. Diğer yapılandırılmalarda, soğutma, hidroksillenmiş benzenin %75'inin tüketilmesine sürdürülmektedir. Yine diğer yapılandırılmalarda, yüzdeler %90 ve %99'dur.

5

Reaksiyon seyrinin izlenmesine yönelik bir alternatif araç, hidroksillenmiş benzenin yerine aldehid tüketiminin izlenmesidir. Bu yöntemin kullanılmasında, sıcaklığın %30 ila %90 aldehidin tüketilmesi için yeterli olan bir süre boyunca kontrol edilmesi arzu edilebilmektedir. Bazı yapılandırılmalarda, %40 ila %70 oranında aldehidin tüketilmesi için yeterli bir süre boyunca sıcaklığın kontrol edilmesi arzu edilebilmektedir.

10

Özellikle bu tür sol-jel reçinelerinin yapımına yönelik konvansiyonel araçların aksine, mevcut buluşun yöntemleri, bir partiküle veya pelete yol açmaktadır. Çoğunlukla kullanımdan önce pulverizasyon işlemi gerektiren konvansiyonel işlemlerden ortaya çıkan monolitik ürünlere kıyasla, mevcut buluşun yöntemleri aracılığıyla üretilen reçine partikülleri kolaylıkla ve güvenli bir şekilde kullanılabilir. Tipik olarak, mevcut buluşun yöntemlerinin yapılandırılmaları 0.5 mm ila 20 mm'lik bir ortalama partikül boyutuna sahip bir reçine üretmek için kullanılabilir. Ancak bazı uygulamalarda, farklı çaplara sahip reçine partikülleri üretmek için kullanılan çalkalama işlemi kontrol edilebilmektedir.

15

20

Mevcut buluşun yöntemleri kullanılarak üretilen partiküllerin diğer avantajlarına ek olarak, reçine partikülleri, istenen geometri aralığına sahip bir nesne şekline getirilebilmektedir. Aynı zamanda arzu edildiği takdirde, mevcut buluşun yöntemlerinden ortaya çıkan partiküllerden hazırlanan nesnelere, 50°C ila 100°C aralığındaki bir sıcaklıkta kürlenebilmektedir. Bazen, 80°C ile 90°C aralığındaki sıcaklıklarda kürlendirme yapılarak arzu edilebilmektedir.

25

Mevcut buluşun yöntemlerinin uygulanmasında, bir veya iki adımda reaktantların polimerize edilmesi arzu edilebilmektedir. İki adımlı işlemde, aldehid, birinci reaktörün içinde hidroksillenmiş benzen karışımına getirilmekte ve hidroksillenmiş benzenin en az %60'ünün tüketilmesinden sonra reaksiyon kütlesi, ikinci kaba aktarılmaktadır.

30

Bir alternatif yapılandırılmada, tek adımlı işlem kullanılabilir ve burada, reaksiyonun tamamı tek bir reaktörün içinde meydana gelmektedir. Mevcut başvuru amaçları doğrultusunda, karıştırıcı veya reaktör terimlerinin sol-jel reçinesi oluşturmak için yeterli sıcaklıklarda, çalkalama işlemiyle birlikte reaksiyonu gerçekleştirme kapasitesi olan herhangi

35

5 bir cihazı içerdiği tanınmaktadır. İlâveten, teknikte uzman kişiler tarafından bilinen, reaktörün dışında veya içinde karıştırma yapılmasına yönelik herhangi bir yöntem, mevcut buluşla kullanılabilmektedir. Bu tür yöntemler, bununla sınırlı olmamak üzere, hamur yoğurma makineleri, Sigma-Aldrich® karıştırıcılar, çift helezonlu ekstrüderler, BUSS™
10 yoğurma makineleri ve peletleyiciler, planet mikserler veya örneğin PowerMix™ markası altında Charless Ross & Son Co. Şirketi (Hauppauge, New York) tarafından satılan Cowles Mixers cihazı PDM ve benzerini içeren çalkalayıcılar ve karıştırıcılar kullanılmaktadır. Aynı zamanda US 4128568 sayılı Patent Dokümanında kullanılan gibi hücre-reaktörleri; "Plaste und Kautschuk 30"da (1983, 181-185) tarif edilen mono veya çift helezonlu reaktörler; ve benzeri de kullanılabilmektedir.

15 Mevcut buluşun yöntemlerinin bazı yapılandırmalarında, reaksiyon kütesinin basıncının kontrol edilmesi ve reaktantların ve/veya solventlerin emisyonunun önlenmesi arzu edilebilmektedir. Bu yapılandırmalarda, reaktör veya karıştırıcı vakum sistemleriyle donatılabilmektedir. Özellikle, buhar emisyonlarının önlenmesinin arzu edildiği durumlarda vakum sistemleri, bu tür emisyonları yakalamak için bileşenler içerebilmektedir. Bu tür bir bileşen, bir geri akış sistemi olacaktır. Teknikte uzman kişiler tarafından istenmeyen bileşiklerin emisyonunun önlenmesi veya azaltılmasına konusunda kullanılarak görülen herhangi bileşen, vakum sistemiyle veya vakum sistemi olmaksızın kullanılabilmektedir.

20

ÖRNEKLER

ÖRNEK 1, buluşun parçası değildir

25 Şekil 1'e atılarak bulunarak, jel, asetik asit, amonyum asetat, su, fenol, rezorsinol ve formaldehid karışımından hazırlanmıştır. %31.8 oranında hesaplanmış katı madde elde etmek amacıyla yeterli su ilave edilmiştir. Hesaplanmış katı madde değeri, formaldehid, fenol ve rezorsinol reçete miktarlarına dayanmıştır. Formaldehid, 60°C'de 50 dakikalık bir süre boyunca bir reaksiyon kabındaki diğer bileşenlere ilave edilmiştir. İçerik maddeleri,
30 formaldehid ekleme işleminin tamamlanmasından sonra 10 dakika boyunca 60°C'de tutulmuştur. Malzemeler, 55°C'ye soğutulmuş ve %6.8 oranında serbest formaldehid değeri ve %7.1 oranında serbest fenol değeri elde etmek için 170 dakika boyunca yoğunlaştırılmıştır. Malzeme, bir karıştırıcıya aktarılmış ve burada granüler veya partikül hali elde edilene dek sıtılarak karıştırılmıştır. Fenol : rezorsinol oranı 0.54 (yani %35 mol
35 rezorsinol, fenol ile değiştirilmiştir) olmuştur. Fenol, rezorsinol : formaldehid oranı 0.50

olmuştur. Bu şekilde yapılan reçine, %7.05 oranında serbest fenol ve %6.75 oranında serbest formaldehide sahip, görünüş olarak tanecikli bir ürün üretmiştir. Bu şekilde yapılan malzeme, daha sonra bir kaba aktarılmış ve reçinenin kürlenmesi için 57 saat boyunca 85°C'lik bir sıcaklığa maruz bırakılmıştır. Serbest fenol %0.08 olmuş ve serbest formaldehid ise %3.8 olmuştur.

ÖRNEK 2a, buluşun parçası değildir

Şekil 2'ye atıfta bulunarak, jel, asetik asit, amonyum asetat, su, fenol, rezorsinol ve formaldehid karışımından hazırlanmış %29.1 oranında hesaplanmış katı madde elde etmek amacıyla yeterli su ilave edilmiştir. Hesaplanmış katı madde değeri, formaldehid, fenol ve rezorsinol reçete miktarlarına dayanmıştır. Formaldehid, 60°C'de 50 dakikalık bir süre boyunca bir reaksiyon kabındaki diğer bileşenlere ilave edilmiştir. İçerik maddeleri, formaldehid ekleme işleminin tamamlanmasından sonra 10 dakika boyunca 60°C'de tutulmuştur. Malzemeler, 55°C'ye soğutulmuş ve %5 oranında serbest formaldehid değeri ve %3.5 oranında serbest fenol değeri elde etmek için 2,5 saat boyunca yoğunlaştırılmıştır. Malzeme, bir karıştırıcıya aktarılmış ve burada granüler veya partikül hali elde edilene dek süzülerek karıştırılmıştır. Fenol : rezorsinol oranı 0.25 (yani %20 mol rezorsinol, fenol ile değiştirilmiştir) olmuştur. Fenol, rezorsinol : formaldehid oranı 0.50 olmuştur. Bu şekilde yapılan reçine, %3.5 oranında serbest fenol ve %4.9 oranında serbest formaldehide sahip, görünüş olarak tanecikli bir ürün üretmiştir. Malzeme, daha sonra bir kaba aktarılmış ve reçinenin kürlenmesi için 60 saat boyunca 85°C'lik bir sıcaklığa maruz bırakılmıştır. Tespit edilebilir hiçbir serbest fenol bulunmamış ve serbest formaldehid ise %2.25 olmuştur.

ÖRNEK 2b, buluşun parçası değildir

Yine Şekil 2'ye atıfta bulunarak, jel, asetik asit, amonyum asetat, su, rezorsinol ve formaldehid karışımından hazırlanmış %30.0 oranında hesaplanmış katı madde elde etmek amacıyla yeterli su ilave edilmiştir. Hesaplanmış katı madde değeri, formaldehid ve rezorsinol reçete miktarlarına dayanmıştır. Formaldehid, 60°C'de 50 dakikalık bir süre boyunca bir reaksiyon kabındaki diğer bileşenlere ilave edilmiştir. Formaldehid beslemesinin tamamlanmasından 10 dakika sonra, malzeme, 52°C'ye soğutulmuş ve 130 dakika boyunca yoğunlaştırılmıştır. Malzeme, daha sonra bir karıştırıcıya aktarılmış ve 1 saat boyunca 50°C'de yoğunlaştırılmıştır. Rezorsinol : formaldehid oranı 0.5 olmuştur. Bu şekilde yapılan reçine, %3.4 oranında serbest formaldehide sahip, görünüş olarak tanecikli bir ürün üretmiştir.

Malzeme, daha sonra bir kaba aktarılmış ve reçinenin kürlenmesi için 50 saat boyunca 85°C'lik bir sıcaklığa maruz bırakılmıştır.

ÖRNEK 2c, buluşun parçası değildir

5

İlaveten Şekil 2'ye atılarak bulunarak, jel, asetik asit, amonyum asetat, su, rezorsinol ve formaldehid karışımından hazırlanmış %29.5 oranında hesaplanmış katı madde elde etmek amacıyla yeterli su ilave edilmiştir. Hesaplanmış katı madde değeri, formaldehid ve rezorsinol reçete miktarlarına dayanmıştır. Formaldehid, 60°C'de 50 dakikalık bir süre boyunca bir reaksiyon kabındaki diğer bileşenlere ilave edilmiş ve 10 dakika daha 60°C'de tutulmuştur. Malzeme, 52°C'ye soğutulmuş ve 150 dakika boyunca yoğunlaştırılmıştır. Rezorsinol : formaldehid oranı 0.5 olmuştur. Bu şekilde yapılan reçine, görünüş olarak tanecikli bir ürün üretmiştir. Malzeme, daha sonra reçinenin kürlenmesi için 36 saat boyunca 85°C'lik bir sıcaklığa maruz bırakılmıştır. Bu şekilde yapılan reçine, Şekil 5'te gösterilen BET sonuçları vermiştir.

15

ÖRNEK 3, buluşun parçası değildir

Şekil 3'e atılarak bulunarak, jel, asetik asit, amonyum asetat, su, elde etmek amacıyla yeterli su ilave edilmiştir. Hesaplanmış katı madde değeri, formaldehid ve rezorsinol reçete miktarlarına dayanmıştır. Rezorsinol : formaldehid oranı 0.5 olmuştur. Formaldehid, 65°C'de 50 dakikalık bir süre boyunca bir karışımındaki asetik asit, amonyum asetat, su ve rezorsinole ilave edilmiştir. Karışım, formaldehidin ilave edilmesinden sonra 10 dakika boyunca 65°C'de tutulmuştur. Daha sonra soğutulmuş ve 188 dakika boyunca 55°C'de yoğunlaştırılmıştır. Sıcaklık daha sonra 70°C'ye çıkarılmış ve 11 saat, 45 dakika boyunca tutulmuştur. Daha sonra 30°C'den daha az bir sıcaklığa soğutulmuş ve bir kaba aktarılmıştır. Bu şekilde yapılan reçine, %1.8 oranında serbest formaldehide sahip, görünüş olarak tanecikli bir ürün üretmiştir.

25

30 ÖRNEK 4a

Jel, asetik asit, amonyum hidroksit, su, fenol, rezorsinol ve formaldehid karışımından hazırlanmış %54.0 oranında hesaplanmış katı madde elde etmek amacıyla yeterli su ilave edilmiştir. Hesaplanmış katı madde değeri, formaldehid, fenol ve rezorsinol reçete miktarlarına dayanmıştır. Fenol : rezorsinol oranı 2.35 (yani %70 mol rezorsinol, fenol ile

35

değiştirilmiştir) olmaktadır. Formaldehid, 65°C'de 50 dakikalık bir süre boyunca su, amonyum hidroksit ve fenole ilave edilmektedir. İçerik maddeleri, formaldehid ilavesinin tamamlanmasından sonra 10 dakika boyunca 65°C'de tutulmuştur. Karışım, %7.5 oranında serbest formaldehid değeri elde edilene dek 2 saat, 35 dakika boyunca 75°C'de yoğunlaştırılmıştır. Daha sonra asetik asit ilave edilmekte ve parti, 37°C'ye soğutulmaktadır. Ara ürün, aşağıdaki özelliklere sahip olmuştur: %6.1 oranında serbest formaldehid; %6.0 oranında fenol; pH 3.2. Daha sonra ara maddeye rezorsinol ilave edilmiş ve çözünmeye bırakılmıştır. Bu şekilde yapılan malzeme, daha sonra reçinenin kürlenmesi için 48 saat boyunca 85°C'lik sıcaklığa maruz bırakılmıştır. Ortaya çıkan numune, bu şekilde monolit haline getirilen reçine olmuş ve Şekil 6'da gösterilen BET sonuçları vermiştir.

ÖRNEK 4b

Jel, asetik asit, amonyum hidroksit, su, fenol, rezorsinol ve formaldehid karışımından hazırlanmıştır. %54.7 oranında hesaplanmış katı madde elde etmek amacıyla yeterli su ilave edilmiştir. Hesaplanmış katı madde değeri, formaldehid, fenol ve rezorsinol reçete miktarlarına dayanmıştır. Fenol : rezorsinol oranı 3.44 (yani %77 mol rezorsinol, fenol ile değiştirilmiştir) olmaktadır. Fenol, rezorsinol : formaldehid oranı 0.63 olmaktadır. Formaldehid, 65°C'de 40 dakikalık bir süre boyunca su, amonyum hidroksit ve fenole ilave edilmektedir. İçerik maddeleri, formaldehid ilavesinin tamamlanmasından sonra 72°C'ye soğutulmaktadır. Karışım, 3 saat boyunca 75°C'de yoğunlaştırılmaktadır. Daha sonra asetik asit ilave edilmekte ve parti, 30°C'ye soğutulmaktadır. Bu ara ürün, aşağıdaki özelliklere sahip olmuştur: %6.2 oranında serbest formaldehid; %5.1 oranında fenol; pH 3.22. Daha sonra ara maddeye rezorsinol ilave edilmiş ve çözünmeye bırakılmıştır. Bu şekilde yapılan malzeme, daha sonra reçinenin kürlenmesi için 48 saat boyunca 95°C'lik sıcaklığa maruz bırakılmıştır. Ortaya çıkan numune, bu şekilde monolit haline getirilen reçine olmuş ve Şekil 7'de gösterilen BET sonuçları vermiştir.

ÖRNEK 4c

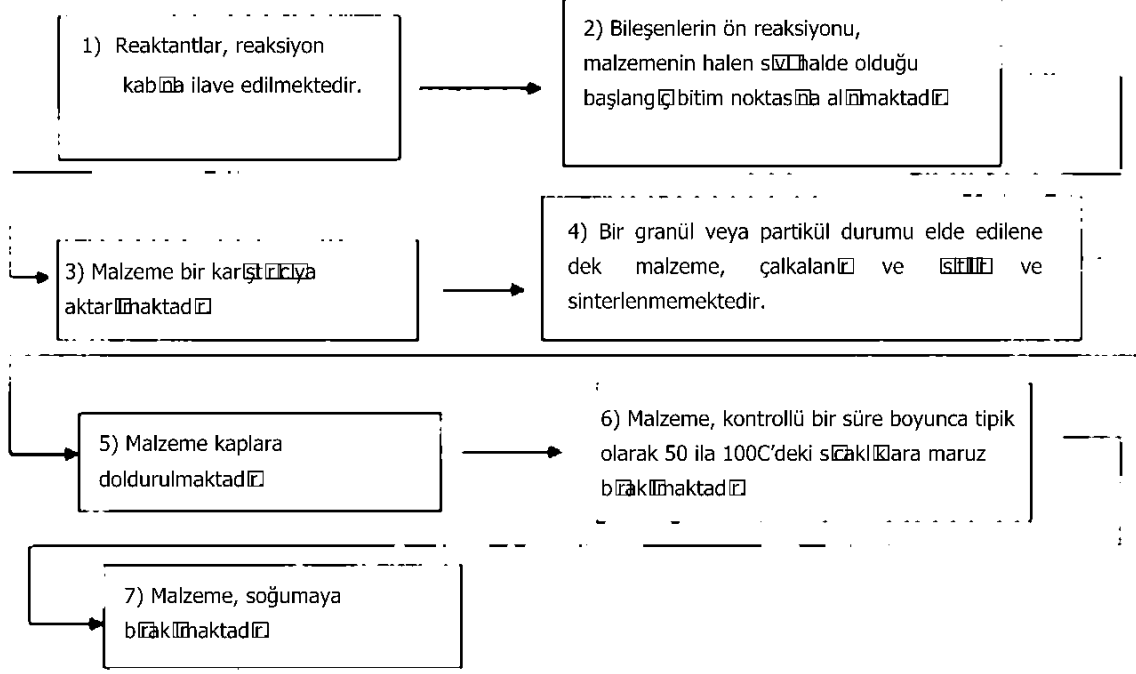
Şekil 4'e atfıyla bulunarak, jel, asetik asit, amonyum hidroksit, su, fenol, rezorsinol ve formaldehid karışımından hazırlanmıştır. %52.7 oranında hesaplanmış katı madde elde etmek amacıyla yeterli su ilave edilmiştir. Hesaplanmış katı madde değeri, formaldehid, fenol ve rezorsinol reçete miktarlarına dayanmıştır. Fenol : rezorsinol oranı 3.0 (yani %75 mol rezorsinol, fenol ile değiştirilmiştir) olmaktadır. Fenol, rezorsinol : formaldehid oranı 0.65

olmaktadır. Formaldehid, 65°C'de 30 dakikalık bir süre boyunca su, amonyum hidroksit ve fenole ilave edilmektedir. İçerik maddeleri, formaldehid ilavesinin tamamlanmasından sonra 10 dakika boyunca 65°C'de tutulmuştur. Karşın, 3 saat boyunca 72°C'de yoğunlaştırılmıştır. Daha sonra asetik asit ilave edilmekte ve parti, 35°C'ye soğutulmaktadır. Ara ürün, aşağıdaki özelliklere sahip olmuştur: %6.3 oranında serbest formaldehid; %5.0 oranında fenol; pH 3.3. Daha sonra ara maddeye rezorsinol ilave edilmiş ve çözünmeye bırakılmıştır. Ara ürün, daha sonra 68°C ila 70°C'ye iletmiştir. Bu sıcaklık 30 dakika boyunca korunmuştur. Ara ürün, daha sonra 58°C ila 60°C'ye soğutulmuştur. Bu sıcaklık 90 dakika boyunca korunmuş ve sonrasında parti, 35°C'ye soğutulmuştur. Bu şekilde yapılan reçine, %4.0 oranında serbest fenol, %2.2 oranında serbest formaldehite sahip olmuş ve parçacık biçimde olmuştur. Malzeme, daha sonra reçinenin kürlenmesi için 48 saat boyunca 85°C'lik sıcaklığa maruz bırakılmıştır. Numune, Şekil 8'de gösterilen BET sonuçları vermiştir.

Yukarıdaki partilerin BET sonuçları ham madde maliyet tasarruflarıyla yüzey alanı ve dağılımını sağlamıştır.

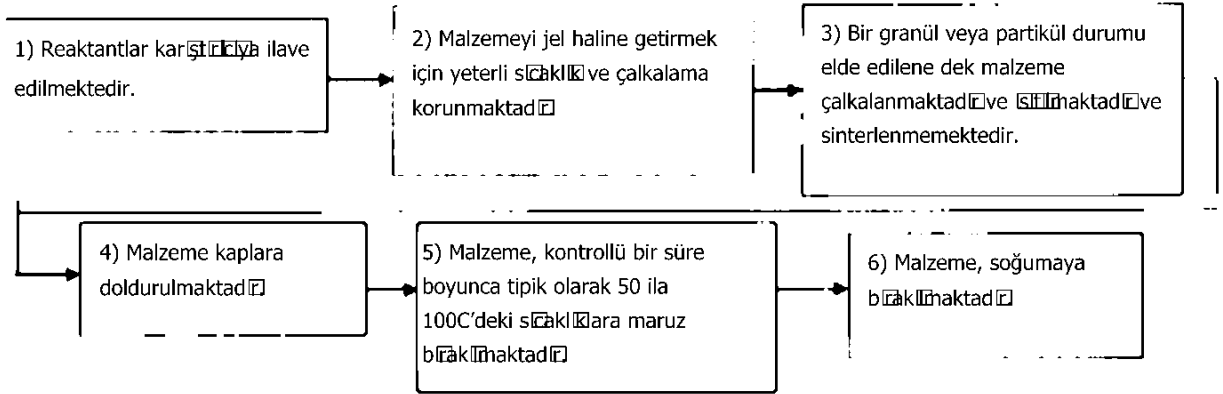
Şekil 1 Buluş

Yayın 1, bir süre boyunca formaldehitin ilave edilmesi aracılığıyla asgari seviyeye indirilmektedir.



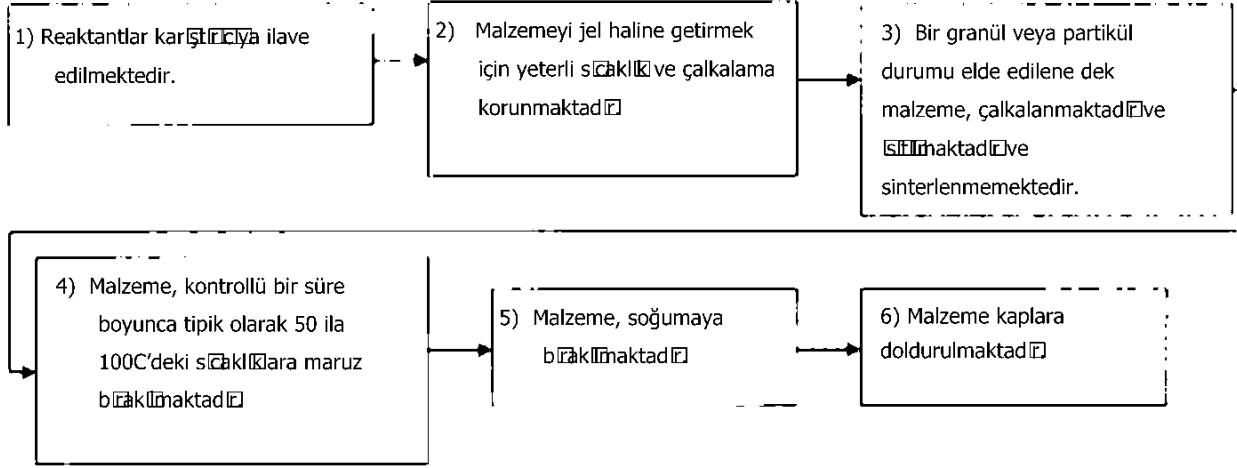
Şekil 2 Buluş

Yayın 1, bir süre boyunca formaldehitin ilave edilmesi aracılığıyla asgari seviyeye indirilmektedir.



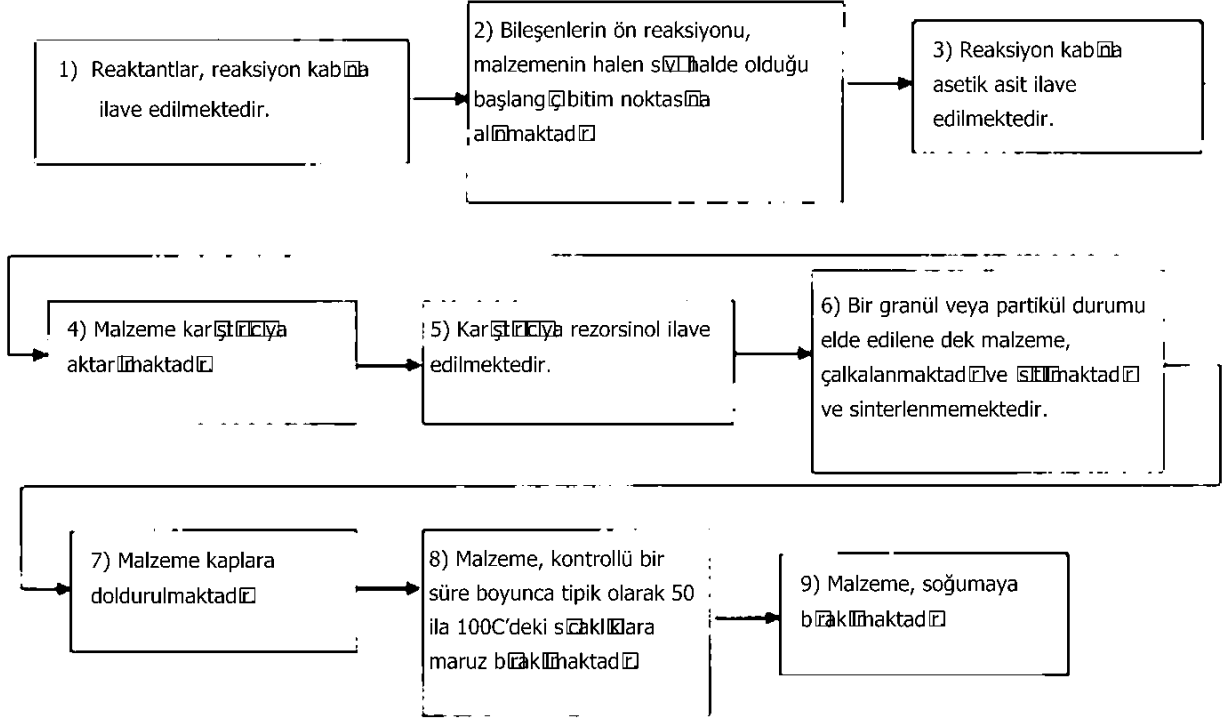
Şekil 3 Buluş

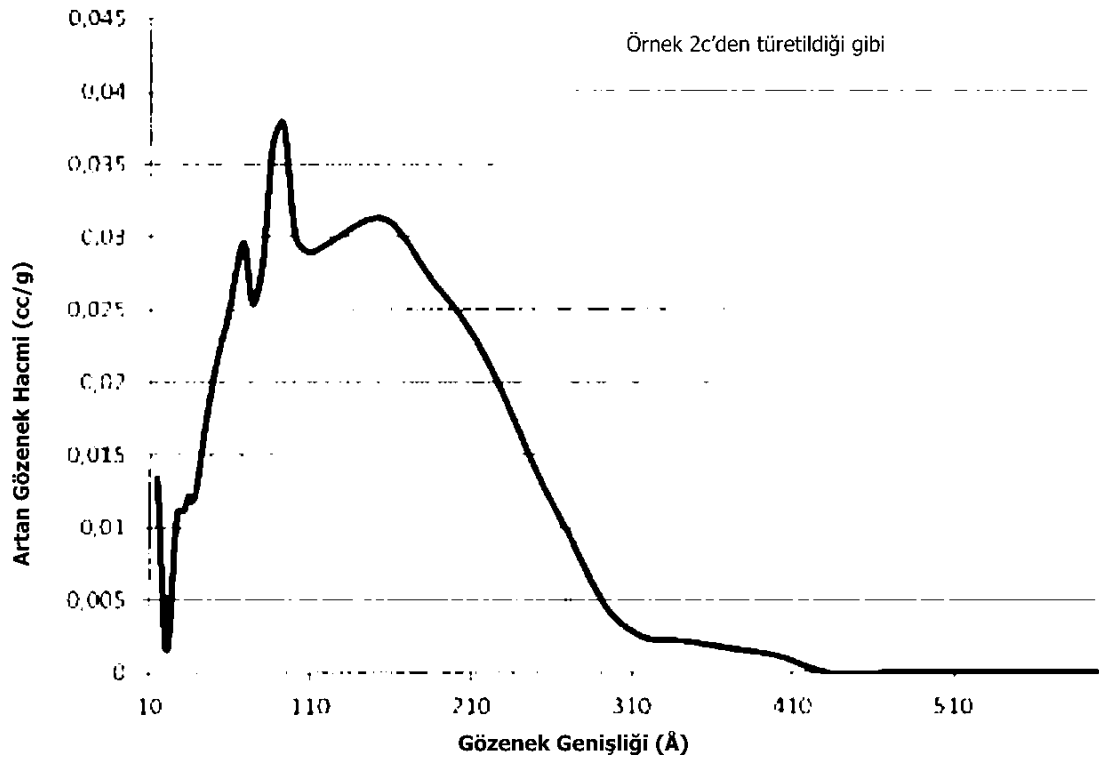
Yayılan ısı, bir süre boyunca formaldehitin ilave edilmesi aracılığıyla asgari seviyeye indirilmektedir.



Şekil 4 Buluş

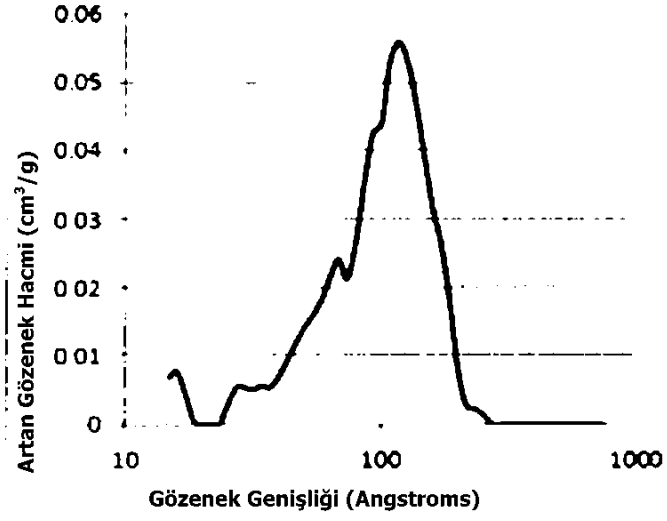
Yayın 50 bir süre boyunca formaldehitin ilave edilmesi aracılığıyla asgari seviyeye indirilmektedir.



Şekil 5 BET aracıyla ölçülen artan gözenek hacmi

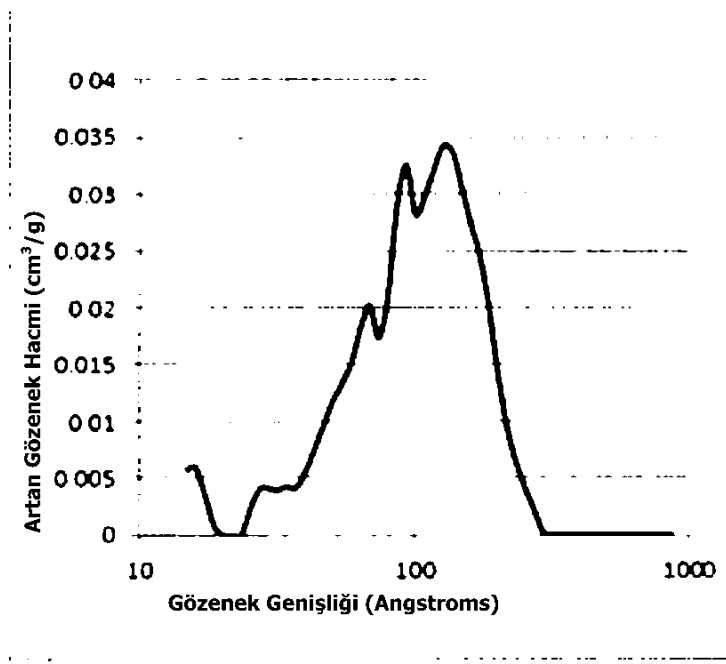
Şekil 6 Genişlik Fonksiyonu olarak Artan Gözenek Hacmi

(Örnek 4a)



Şekil 7 Genişlik Fonksiyonu olarak Artan Gözenek Hacmi

(Örnek 4b)



Şekil 8 Genişlik Fonksiyonu olarak Artan Gözenek Hacmi

(Örnek 4c)

