



УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **131064** (13) **C2**
(51) МПК (2026.01)**B01J 29/40** (2006.01)
B01J 29/89 (2006.01)
C07D 301/08 (2006.01)
C07D 301/12 (2006.01)
B01J 35/37 (2024.01)
B01J 35/00
B01J 35/63 (2024.01)

НАЦІОНАЛЬНИЙ ОРГАН
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ ВЛАСНОСТІ
ДЕРЖАВНА ОРГАНІЗАЦІЯ
"УКРАЇНСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ
ОФІС ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІ ТА ІННОВАЦІЙ"

(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

(21) Номер заявки: а 2021 06782	(72) Винахідник(и): Парвулеску Андреї-Ніколае (DE), Лютцель Ганс-Юрген (DE), Ріедель Домінік (DE), Мюллер Ульріх (DE), Телес Йоакім Хенрік (DE), Вебер Маркус (DE)
(22) Дата подання заявки: 27.04.2020	(73) Володілець (володільці): БАСФ СЕ, Carl-Bosch-Strasse 38, 67056 Ludwigshafen am Rhein, Germany (DE)
(24) Дата, з якої є чинними права інтелектуальної власності: 30.07.2026	(74) Представник: Шамріна Олена Олексіївна, реєстр. №141
(31) Номер попередньої заявки відповідно до Паризької конвенції: 19171503.6	(56) Перелік документів, взятих до уваги експертизою: US 2016250624 A1, 01.09.2016 US 6551546 B1, 22.04.2003 DE 19859561 A1, 29.06.2000 US 7825204 B2, 02.11.2010 US 2016/0137516 A1, 19.05.2016
(32) Дата подання попередньої заявки відповідно до Паризької конвенції: 29.04.2019	
(33) Код держави-учасниці Паризької конвенції, до якої подано попередню заявку: EP	
(41) Публікація відомостей про заявку: 29.12.2021, Бюл.№ 52	
(46) Публікація відомостей про державну реєстрацію: 29.07.2026, Бюл.№ 30	
(86) Номер та дата подання міжнародної заявки, поданої відповідно до Договору РСТ PCT/EP2020/061597, 27.04.2020	

(54) ФОРМОВАНИЙ ВИРІБ, ЯКИЙ МІСТИТЬ ЦЕОЛІТНИЙ ТИТАНОСИЛІКАТ ТИПУ MFI ТА КРЕМНІЄДІОКСИДНУ ЗВ'ЯЗУЮЧУ РЕЧОВИНУ, СПОСІБ ЙОГО ОТРИМАННЯ ТА ЗАСТОСУВАННЯ ЯК КАТАЛІЗАТОРА**(57) Реферат:**

Хімічний формований виріб, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і який має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначеного цеолітного матеріалу, де зв'язуюча речовина містить Si та O, при цьому формований виріб має загальний об'єм пор щонайменше 0,4 мл/г і міцність на роздавлювання щонайменше 6 Н.

UA 131064 C2

Представлений винахід стосується хімічного формованого виробу, зокрема, який містить відповідну зв'язуючу речовину та відповідний цеолітний матеріал, який має каркасний тип MFI і каркасну структуру, яка містить Si, O та Ti.

Відомо, що цеолітні матеріали, які містять титан, структурного типу MFI, які демонструють ізотерму адсорбції/десорбції азоту I типу, такі як силікаліт титану-1, є ефективними каталізаторами, включаючи, наприклад, реакції епоксидування. У таких промислових процесах, які зазвичай проводять у безперервному режимі, ці цеолітні матеріали зазвичай використовуються у формі формованого виробу, які, на додаток до каталітично активного цеолітного матеріалу, містять відповідну зв'язуючу речовину.

Документ US 2016/250624 A1 відноситься до способу виробництва формованого виробу, який містить гідрофобні цеолітні матеріали, і до способу його виготовлення.

Документ US 6551546 B1 відноситься до способу виробництва формованого виробу, який містить, щонайменше, один пористий оксидний матеріал і, щонайменше, один оксид металу.

Документ DE 19859561 A1 аналогічним чином відноситься до способу виробництва формованого виробу, що містить, щонайменше, один пористий оксидний матеріал і, щонайменше, один оксид металу.

Документ US 7825204 B2 відноситься до екструдату, який містить неорганічний оксид, і описаний полімер з гребінчасто-розгалуженим ланцюгом.

Метою представленого винаходу було створити новий і вигідний формований виріб, який містить цеолітний матеріал, що має каркасний тип MFI і має переважні властивості, зокрема, покращену селективність стосовно пропіленоксиду при використанні як каталізатора або компонента каталізатора, зокрема, в реакції епоксидування пропену в пропіленоксид. Наступною метою представленого винаходу було запропонувати виробництво такого формованого виробу, зокрема, забезпечити спосіб, в результаті якого формований виріб має переважні властивості, зазвичай, коли використовується як каталізатор або компонент каталізатора, зокрема, для реакції окислення або реакції епоксидування. Наступною метою представленого винаходу було забезпечити вдосконалений спосіб епоксидування пропену перекисом водню як окислювачем, який демонструє дуже низьку селективність щодо побічних продуктів і побічних продуктів реакції епоксидування, водночас, що забезпечує дуже високу селективність стосовно пропілену.

Несподівано було виявлено, що такий формований виріб, який демонструє зазначені переважні властивості, може бути отриманий, якщо для виготовлення формованих матеріалів використовується специфічний матеріал попередник зв'язуючої речовини, а проміжний формований виріб, що містить цеолітний матеріал, що має каркасний тип MFI, піддається відполівній наступній обробці. Зокрема, несподівано було виявлено, що може бути забезпечено формований виріб, який показує, якщо його використовувати як каталізатор в реакції епоксидування пропену до пропіленоксиду, і якщо порівнювати з формованими матеріалами попереднього рівня техніки, значно підвищує селективність і вихід пропіленоксиду, а також демонструє відмінні довговічні властивості.

Таким чином, представлений винахід стосується хімічного формованого виробу, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, і який має каркасний тип MFI і каркасну структуру, яка містить Si, O і Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначеного цеолітного матеріалу, причому зв'язуюча речовина містить Si та O, при цьому формований виріб має загальний об'єм пор, щонайменше, 0,4 мл/г і міцність на роздавнення, щонайменше, 6Н. Зокрема, представлений винахід стосується формованого виробу, який містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і який має каркасний тип MFI і каркасну структуру, яка містить Si, O і Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначеного цеолітного матеріалу, де зв'язуюча речовина містить Si та O, при цьому формований виріб демонструє загальний об'єм пор щонайменше 0,4 мл/г, визначений, як описується в довідковому прикладі 2, і міцність на роздавлювання при щонайменше 6Н, визначено, як описується в довідковому прикладі 3.

Відповідно до представленого винаходу під формованим виробом слід розуміти тривимірний об'єкт, отриманий в результаті процесу формування; відповідно, термін "формування" використовується як синонім терміну "формоване тіло".

Крім того, представлений винахід відноситься до способу отримання хімічного формованого виробу, який містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і який має каркасний тип MFI і каркасну структуру, яка містить Si, O та Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначеного цеолітного матеріалу, де зв'язуюча речовина містить Si та

О, переважно для отримання хімічного формованого виробу, відповідно до винаходу, як описується в даному документі, де спосіб включає

(i) забезпечення цеолітного матеріалу, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, що має каркасний тип MFI і каркасну структуру, яка містить Si, O та Ti;

(ii) забезпечення попередника зв'язуючої речовини, що містить колоїдну дисперсію діоксиду кремнію у воді, при цьому зазначений попередник зв'язуючої речовини демонструє розподіл частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv10 щонайменше 35 нанометрів, значенням Dv50 щонайменше 45 нанометрів і значенням Dv90 щонайменше 65 нанометрів, визначеним, як описується в довідковому прикладі 5;

(ii) приготування суміші, яка містить цеолітний матеріал, наведений у (i), і попередник зв'язуючої речовини, наведений у (ii);

(iii) формування суміші, отриманої з (iii), отримання попередника формованого виробу;

(v) приготування суміші, яка містить попередник формованого виробу, отриманий з (iv) і воду, та піддавання суміші водній обробці в гідротермальних умовах з отриманням обробленого водою попередника формованого виробу;

(vi) прожарювання обробленого водою попередника формованого виробу в газовій атмосфері з отриманням формованого виробу.

Крім того, представлений винахід стосується хімічного формованого виробу, що містить частинки цеолітного матеріалу, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, що має каркасний тип MFI і каркасну структуру, яка містить Si, O і Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначених частинок, де зв'язуюча речовина містить Si та O, при цьому переважно хімічний формований виріб може бути отриманий або отримується з використанням способу відповідно до представленого винаходу, як описується в даному документі.

Крім того, представлений винахід відноситься до застосування формованого виробу відповідно до представленого винаходу, як описується в даному документі, як адсорбент, абсорбент, каталізатор або компонент каталізатора, переважно як каталізатор або як компонент каталізатора, більш переважно як каталізатор на основі кислоти Льюїса або компонент каталізатора на основі кислоти Льюїса, як каталізатор ізомеризації або як компонент каталізатора ізомеризації, як каталізатор окислення або як компонент каталізатора окислення, як каталізатор альдольної конденсації або як компонент каталізатора альдольної конденсації, або як каталізатор реакції Принса або як компонент каталізатора реакції Принса.

Крім того, представлений винахід відноситься до способу окислення органічної сполуки, що включає приведення органічної сполуки в контакт, переважно в безперервному режимі, з каталізатором, який містить формований виріб, як описується в даному документі, переважно для епоксидування органічної сполуки, більше переважно для епоксидування органічної сполуки, яка має принаймні один подвійний зв'язок C=C, переважно C2-C10 алкен, більш переважно C2-C5 алкен, більш переважно C2-C4 алкен, більш переважно C2 або C3 алкен, більш переважно пропен.

Крім того, представлений винахід відноситься до способу одержання пропіленоксиду, що включає взаємодію пропену, переважно в безперервному режимі, з пероксидом водню в метанольному розчині в присутності каталізатора, що містить формувальний виріб, як описується в даному документі, для отримання пропіленоксиду.

Крім того, представлений винахід відноситься до використання колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді як попередника зв'язуючої речовини для приготування хімічного формованого виробу, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, який має каркасний тип MFI і каркасну структуру, що містить Si, O і Ti, формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину, отриману із зазначеного попередника зв'язуючої речовини, переважно для приготування формованого виробу, як описано в даному документі, при цьому зазначений діоксид кремнію демонструє розподіл розмірів частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv10, щонайменше, 35 нанометрів, переважно в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv50, щонайменше, 45 нанометрів, переважно в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів і значення Dv90, щонайменше, 65 нанометрів, переважно в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначений, як описується в довідковому прикладі 5, зазначений формований виріб переважно має загальний об'єм пор, щонайменше,

0,4 мл/г, визначений, як описується в довідковому прикладі 2, і міцність на роздавлювання, щонайменше, 6 Н, визначену, як описується в довідковому прикладі 3.

Що стосується хімічного формованого виробу відповідно до представленого винаходу, то переважно, щоб від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш
5 переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більше переважно від 99,9 до 100 масових % цеолітного матеріалу, що міститься у формованому виробі, складається з Si, O, Ti та, необов'язково, H.

Що стосується цеолітного матеріалу, який міститься в хімічному формованому виробі, то переважно, щоб цеолітний матеріал містив Ti в кількості в діапазоні від 0,2 до 5 мас. %, переважно в діапазоні від 0,5 до 4 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,0 до 3
10 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,2 до 2,5 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,4 до 2,2 масових %, в розрахунку на елементарний Ti і на основі загальної маси цеолітного матеріалу.

Крім того, переважно, щоб цеолітним матеріалом, який міститься у формованому виробі,
15 був силікаліт титану-1.

Що стосується зв'язуючої речовини, то переважним є те, що формований виріб, який складається з Si та O, містить від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш
20 переважно від 99,9 до 100 масових % зв'язуючої речовини.

Переважним є те, щоб формований виріб містив зв'язуючу речовину, розраховану як SiO₂, в кількості в діапазоні від 2 до 90 масових %, більш переважно в діапазоні від 5 до 70 масових %, більш переважно в діапазоні від 10 до 50 масових %, більш переважно в діапазоні від 15 до 30 масових %, більш переважно в діапазоні від 20 до 25 масових % у розрахунку на загальну
масу формованого виробу.

Крім того, переважно, від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш
25 переважно від 99,9 до 100 масових % формованого виробу складається з цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини.

Переважно, щоб формований виріб містив мікропори, які мають діаметр пор у діапазоні від
30 0,1 до менше 2 нм, визначений, як описується в довідковому прикладі 4. Крім того, переважно, щоб формований виріб містив мезопори, що мають діаметр пор у діапазоні від 2 до 50 нм, визначені, як описується в довідковому прикладі 4. Таким чином, особливо переважно, щоб формований виріб містив мікропори, що мають діаметр пор у діапазоні від 0,1 до менше 2 нм, визначений, як описується в довідковому прикладі 4 і мезопори, що мають діаметр пор в
35 діапазоні від 2 до 50 нм, визначений, як описується в довідковому прикладі 4.

Переважно, як описано в даному документі, формований виріб має загальний об'єм пор в діапазоні від 0,4 до 1,5 мл/г, більш переважно в діапазоні від 0,4 до 1,2 5 мл/г, більш переважно в діапазоні від 0,4 до 1,0 мл/г, де об'єм пор визначається, як описується в довідковому прикладі
40 2.

Крім того, переважно, щоб формований виріб, як описано в даному документі, демонструє міцність на роздавлювання в діапазоні від 6 до 25 Н, більш переважно в діапазоні від 7 до 20 Н, більш переважно в діапазоні від 8 до 15 Н, де міцність на роздавлювання визначається, як описується в довідковому прикладі 3.

Переважно, щоб формований виріб представляв собою пасмо. Особливо бажано, щоб
45 формований виріб, який представляє собою пасмо, мав шестикутний, прямокутний, квадратний, трикутний, овальний або круглий поперечний переріз, більш переважно круглий поперечний переріз. Особливо бажано, щоб формований виріб, який являє собою пасмо, представляв собою екструдат.

У разі, коли формований виріб являє собою пасмо, що має круглий поперечний переріз, переважним є, що поперечний переріз має діаметр в діапазоні від 0,5 до 5 мм, більш переважно в діапазоні від 1 до 3 мм, більш переважно в діапазоні від 1,5 до 2 мм. Особливо переважним є те, що формований виріб, який є пасмом, що має круглий поперечний переріз із певним діаметром, як розкрито в даному документі, являє собою екструдат.

Таким чином, переважним є те, що формований виріб, як розкрито в даному документі,
55 являє собою екструдат.

Переважним є те, що формований виріб демонструє параметр звивистості відносно води в діапазоні від 1,0 до 2,5, більш переважно в діапазоні від 1,3 до 2,0, більш переважно в діапазоні від 1,6 до 1,8, більш переважно в діапазоні від 1,3 до 2,0. більш переважно в діапазоні від 1,6 до 1,75, більш переважно в діапазоні від 1,6 до 1,72, визначений, як описується в довідковому
60 прикладі 11.

Крім того, переважним є те, що форма має питому площу поверхні за БЕТ в діапазоні від 300 до 450 м²/г, більш переважно в діапазоні від 310 до 400 м²/г, більш переважно в діапазоні від 320 до 375 м²/г, визначено, як описується в довідковому прикладі 6.

5 Що стосується кристалічності формованого виробу, то, переважним є те, що формований виріб демонструє кристалічність в діапазоні від 50 до 100 %, більш переважно в діапазоні від 50 до 90 %, більш переважно в діапазоні від 50 до 80 %, визначається, як описується в довідковому прикладі 7.

10 Що стосується активності пропіленоксиду формованого виробу, то бажаним є те, що формований виріб пропіленоксиду демонструє активність пропіленоксиду щонайменше 4,5 масових %, більш переважно в діапазоні від 4,5 до 11 масових %, більш переважно в діапазоні від 4,5 до 10 масових %, визначено, як описується в довідковому прикладі 9.

15 Переважним є те, що формований виріб демонструє швидкість перепаду тиску в діапазоні від 0,005 до 0,019 бар(абс)/хв., більш переважно в діапазоні від 0,006 до 0,017 бар(абс)/хв., більш переважно в діапазоні від 0,007 до 0,015 бар (абс)/хв., визначено, як описується в довідковому прикладі 9.

20 Переважно, формований виріб використовують як каталізатор або компонент каталізатора, зокрема, під час реакції для попереднього виділення пропіленоксиду з пропену та перекису водню. У зв'язку з цим переважним є те, що формований виріб, який використовується як каталізатор в реакції отримання пропіленоксиду з пропену та перекису водню, переважно в безперервній реакції епоксидування, як описується в довідковому прикладі 10, демонструє перетворення пероксиду водню в діапазон від 90 до 95 %, де переважно температура охолоджуючого середовища знаходиться в діапазоні від 55 до 56 °C, а тривалість реакції знаходиться в діапазоні від 200 до 600 годин, переважно тривалість реакції знаходиться в діапазоні від 300 до 600 годин, більш переважно тривалість реакції знаходиться в діапазоні від 350 до 600 годин. У зв'язку з цим термін "тривалість реакції" відноситься до тривалості безперервної реакції епоксидування без регенерації каталізатора.

30 Крім того, представлений винахід стосується способу отримання хімічного формованого виробу, який містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і який має каркасний тип MFI і каркасну структуру, яка містить Si, O та Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначеного цеолітного матеріалу, де зв'язуюча речовина містить Si і O, переважно для отримання хімічного формованого виробу, як описано в даному документі, при цьому спосіб включає

35 (i) забезпечення цеолітного матеріалу, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, що має каркасний тип MFI і каркасну структуру, яка містить Si, O і Ti;

40 (ii) забезпечення попередника зв'язуючої речовини, який містить колоїдну дисперсію діоксиду кремнію у воді, при цьому зазначений попередник зв'язуючої речовини має розподіл частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv10, щонайменше, 35 нанометрів, значенням Dv50, щонайменше, 45 нанометрів і значенням Dv90, щонайменше, 65 нанометрів, визначеним, як описується в довідковому прикладі 5;

(iii) приготування суміші, що містить цеолітний матеріал, наведений у (i), і попередник зв'язуючої речовини, наведений у (ii);

(iv) формування суміші, отриманої з (iii), отримання попередника формованого виробу;

45 (v) приготування суміші, що містить попередник формованого виробу, отриманий з (iv) і воду, та піддавання суміші водній обробці в гідротермальних умовах, отримання обробленого водою попередника формованого виробу;

(vi) прожарювання обробленого водою попередника формованого виробу в газовій атмосфері з отриманням формованого виробу.

50 Переважним є те, що розподіл розмірів частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді відповідно до (ii) на основі об'єму характеризується значенням Dv10 в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv50 в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів і значення Dv90 в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначеного, як описується в довідковому прикладі 5.

Крім того, переважним є те, що розподіл частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді відповідно до (ii) на основі об'єму є моноmodalьним розподілом.

60 Що стосується вмісту діоксиду кремнію, що міститься в колоїдній дисперсії діоксиду кремнію

у воді відповідно до (ii), то ніяких особливих обмежень не застосовується. Переважним є те, що колоїдна дисперсія діоксиду кремнію у воді відповідно до (ii) містить діоксид кремнію в кількості в діапазоні від 25 до 65 масових %, більш переважно в діапазоні від 30 до 60 масових %, більш переважно в діапазоні від 35 до 55 масових % у розрахунку на загальну масу діоксиду кремнію та води.

Переважає те, що від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових % попередника зв'язуючої речовини відповідно до (ii) складалося з колоїдної дисперсії діоксиду кремнію в воді.

Крім того, переважним є те, що від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % цеолітного матеріалу відповідно до (i) складається з Si, O, Ti та переважно H.

Що стосується вмісту Ti в цеолітному матеріалі відповідно до (i), то особливих обмежень не застосовується. Переважним є те, що цеолітний матеріал відповідно до (i) містить Ti в кількості в діапазоні від 0,2 до 5 масових %, більш переважно в діапазоні від 0,5 до 4 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,0 до 3 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,2 до 2,5 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,4 до 2,2 масових % у розрахунку на загальну масу цеолітного матеріалу.

Переважає те, що цеолітним матеріалом відповідно до (i) є силікаліт титану-1.

Крім того, переважним є те, що у суміші, приготуваній відповідно до (iii) і підданій (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до суми цеолітного матеріалу і зв'язуючої речовини, розрахованої як SiO₂, знаходиться в діапазоні від 2 до 90 %, більш переважно в діапазоні від 5 до 70 %, більш переважно в діапазоні від 10 до 50 %, більш переважно в діапазоні від 15 до 30 %, більш переважно в діапазоні від 20 до 25 %.

Суміш, розкрита в даному документі, може містити інші додаткові компоненти. Переважним є те, що суміш, приготувана відповідно до (iii) і піддана (iv), додатково містить одну або декілька добавок, більш переважно один або декілька агентів, що модифікують в'язкість, або один або декілька агентів, що утворюють мезопори, або один або більше агентів, що модифікують в'язкість, і один або кілька агентів, що утворюють мезопори.

У випадку, коли суміш, приготувана відповідно до (iii) і піддана (iv), додатково містить одну або декілька добавок, переважно від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % суміші, приготуваної відповідно до (iii) та підданої (iv), яка складається з цеолітного матеріалу, попередника зв'язуючої речовини та однієї або декількох добавок.

Крім того, у випадку, коли суміш, приготувана відповідно до (iii) і піддана (iv), додатково містить одну або декілька добавок, переважним є те, що одна або декілька добавок є вибраними з групи, що складається з води, спиртів, органічних полімерів і суміші двох або більше з них, де органічні полімери переважно вибирають із групи, яка складається з целюлози, похідних целюлози, крохмалю, поліалкіленоксидів, полістиролів, поліакрилатів, поліметакрилатів, поліолефінів, поліамідів, поліефірів та інших сумішей двох або більше з них, де органічні полімери більш переважно вибирають із групи, яка складається з простих ефірів целюлози, поліалкіленоксидів, полістиролів та сумішей двох або більше з них, де органічні полімери більш переважно вибирають із групи, що складається з метилцелюлози, карбоксиметилу целюлози, поліетиленоксидів, полістиролів і сумішей двох або більше з них, де більш переважно, коли одна або більше добавок більш переважно складаються з води, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксиду та полістиролу.

Крім того, у випадку, коли суміш, приготувана відповідно до (iii) і піддана (iv), додатково містить одну або більше добавок, бажано, щоб у суміші, приготуваній відповідно до (iii) і підданій (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу щодо однієї або декількох добавок знаходиться в діапазоні від 0,3:1 до 1:1, більш переважно в діапазоні від 0,4:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,5:1 до 0,6:1.

У випадку, коли суміш, приготувана відповідно до (iii) і піддана (iv), додатково містить похідну целюлози як добавку, переважним є те, що у суміші, приготуваній відповідно до (iii) і підданій (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу відносно похідної целюлози, переважно, ефіру целюлози, більш переважно карбоксиметилцелюлози, знаходиться в діапазоні від 10:1 до 53:1, більш переважно в діапазоні від 15:1 до 40:1, більше переважно в діапазоні від 20:1 до 35:1.

У випадку, коли суміш, приготувана відповідно до (iii) та піддана (iv), додатково містить поліетиленоксид як добавку, переважним є те, що у суміші, приготуваній згідно з (iii) та

підданий (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до поліетиленоксиду знаходиться в діапазоні від 70:1 до 110:1, більш переважно в діапазоні від 75:1 до 100:1, більш переважно в діапазоні від 77:1 до 98:1.

У випадку, коли суміш, приготовлена відповідно до (iii) і піддана (iv), додатково містить полістирол як добавку, переважним є те, що у суміші, приготовленій відповідно до (iii) і підданий (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до полістиролу знаходиться в діапазоні від 2:1 до 8:1, більш переважно в діапазоні від 3:1 до 6:1, більш переважно в діапазоні від 3,5:1 до 5:1.

У випадку, коли суміш, приготовлена відповідно до (iii) та піддана (iv), додатково містить воду як добавку, переважним є те, що у суміші, приготовленої відповідно до (iii) та підданий (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до води знаходиться в діапазоні від 0,7:1 до 0,85:1, більш переважно в діапазоні від 0,72:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,74:1 до 0,079:1.

Особливо переважним є те, що суміш, приготовлена відповідно до (iii) і піддана (iv), додатково містить похідну целюлози, поліетиленоксид, полістирол і воду як добавку.

Що стосується отримання суміші в (iii), тобто способу приготування суміші, то особливих обмежень не застосовується. Переважним є те, що суміш є приготованою шляхом змішування потрібним чином відповідних компонентів, переважно шляхом змішування в місильній машині або в міксері для подрібнення.

Крім того, переважним є те, що відповідно до (iv), суміш, отримана згідно з (iii), є сформованою у вигляді пасма, більш переважно, у вигляді пасма, що має круглий поперечний переріз, при цьому пасмо, що має круглий поперечний переріз, має діаметр переважно в діапазоні від 0,5 до 5 мм, більш переважно в діапазоні від 1 до 3 мм, більш переважно в діапазоні від 1,5 до 2 мм.

Крім того, переважним є те, що суміш, отримана згідно з (iii) і піддана згідно з (iv), має пластичність в діапазоні від 500 до 3000 Н, більш переважно в діапазоні від 750 до 2000 Н, більш переважно в діапазоні від 1000 до 1500 Н, визначені, як описується в довідковому прикладі 12.

Що стосується формування в (iv), то ніяких особливих обмежень не застосовується, щоб формування можна було б виконувати будь-якими можливими засобами. Переважним є те, що формування відповідно до (iv) включає екструдуювання суміші, отриманої згідно з (iii).

Відповідні екструзійні пристрої описані, наприклад, у "Ullmann's Enzyklopädie der Technischen Chemie", 4th edition, vol. 2, page 295 et seq., 1972. Крім використання екструдера, для приготування формованих матеріалів можна також використовувати екструзійний прес. При необхідності екструдер може бути належним чином охолоджений під час процесу екструзії. Пасма, що виходять з екструдера через головку екструдера, можуть бути механічно розрізані відповідним дротом або за допомогою переривчастого газового потоку.

Формований виріб відповідно до (iv) може включати додаткові етапи способу. Переважним є те, що формований виріб відповідно до (iv) додатково включає висушування попередника формованого виробу в газовій атмосфері, причому зазначене висушування переважно здійснюють при температурі газової атмосфери в діапазоні від 80 до 160 °C, більш переважно в діапазоні від 100 до 140 °C, більш переважно в діапазоні від 110 до 130 °C, при цьому газова атмосфера переважно містить азот, кисень або їх суміш, де газова атмосфера більш переважно містить кисень, повітря або збіднене повітря.

Крім того, переважним є, те що формований виріб відповідно до (iv) додатково включає прожарювання переважно висушеного попередника формованого виробу в газовій атмосфері, де прожарювання переважно проводять при температурі газової атмосфери в діапазоні від 450 до 530 °C, більш переважно в діапазоні від 470 до 510 °C, більш переважно в діапазоні від 480 до 500 °C, де газова атмосфера містить переважно азот, кисень або їх суміш, при цьому газова атмосфера більш переважно містить кисень, повітря або збіднене повітря.

Що стосується вмісту води в суміші, приготовленої відповідно до (v), то особливих обмежень не застосовується. Переважним є те, що у суміші, приготованій відповідно до (v), масове співвідношення попередника формованого виробу відносно води знаходиться в діапазоні від 1:1 до 1:30, більш переважно в діапазоні від 1:5 до 1:25, більш переважно в діапазоні від 1:10 до 1:20.

Крім того, переважним є, те що від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % суміші, приготовленої згідно (v), складається з попередника формованого виробу та води.

Що стосується температури суміші для обробки води відповідно до (v), то ніяких особливих

обмежень не застосовується. Переважним є те, що обробка води відповідно до (v) включає температуру суміші в діапазоні від 100 до 200 °С, більш переважно в діапазоні від 125 до 175 °С, більш переважно в діапазоні від 130 до 160 °С, більш переважно в діапазоні від 135 до 155 °С, більш переважно в діапазоні від 140 до 150 °С.

5 Переважним є те, що обробку води згідно (v) проводять під автогенним тиском, переважно в автоклаві.

Переважним є те, що обробку води відповідно до (v) проводять протягом 6-10 го-30 дин, більш переважно протягом 7-9 годин, більш переважно протягом 7,5-8,5 годин.

10 Крім того, переважним є те, що (v) додатково включає відокремлення обробленого водою попередника формованого виробу від суміші, отриманої в результаті обробки водою.

У випадку, коли (v) додатково включає відокремлення обробленого водою попередника формованого виробу від суміші, отриманої в результаті обробки водою, включає піддавання суміші, отриманої в результаті обробки водою, розділенню твердих речовин і рідин, переважно промивання відокремленого попередника і переважно висушування переважно промитого попередника.

15 Крім того, у випадку, коли відокремлення обробленого водою попередника формованого виробу від суміші, отриманої в результаті обробки водою, включає піддавання суміші, отриманої в результаті обробки водою, розділенню твердих речовин та рідини, переважним є те, що розділення твердих речовин та рідини відповідно до (v) включає фільтрацію, або
20 центрифугування, або фільтрацію та центрифугування.

У випадку, коли етап (v) включає промивання відокремленого попередника, переважним є те, що промивання попередника проводять, щонайменше, один раз за допомогою системи рідкого розчинника, причому система рідкого розчинника переважно містить один або більше, вибраний з води, спирту та суміші з двох або більше з них, причому оброблений водою
25 попередник формованого виробу більш переважно промивають водою.

У випадку, коли (v) додатково включає висушування переважно промитого попередника, переважним є те, що висушування відповідно до (v) включає висушування попередника в газовій атмосфері, де сушіння більш переважно здійснюють при температурі газової атмосфери в діапазоні від 80 до 160 °С, більш переважно в діапазоні від 100 до 140 °С, більш переважно в
30 діапазоні від 110 до 130 °С, де газова атмосфера переважно містить азот, кисень або їх суміш, де газом атмосферою є більш переважно кисень, повітря або збіднене повітря.

Що стосується температури газової атмосфери для прожарювання згідно (vi), то ніяких особливих обмежень не застосовується. Переважним є те, що прожарювання згідно (vi) проводять при температурі газової атмосфери в діапазоні від 400 до 490 °С, більш переважно в
35 діапазоні від 420 до 470 °С, більш переважно в діапазоні від 440 до 460 °С, причому газова атмосфера переважно містить азот, кисень або їх суміш, де газова атмосфера є більш переважно киснем, повітрям або збідненим повітрям.

Переважним є те, що спосіб за винаходом, описаним у даному документі, складається з (i), (ii), (iii), (iv), (v) та (vi).

40 Крім того, представлений винахід стосується хімічного формованого виробу, що містить частинки цеолітного матеріалу, які демонструють ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, що має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, формований виріб, що додатково містить зв'язуючу речовину для зазначених частинок, де зв'язуюча речовина містить Si та O, при цьому переважно хімічний
45 формований виріб, як описується в даному документі, можна отримати або отримують за способом, описаним в даному документі.

Крім того, представлений винахід стосується застосування формованого виробу, як описується в даному документі, як адсорбент, абсорбент, каталізатор або компонент каталізатора, переважно як каталізатор або як компонент каталізатора, більш переважно як
50 каталізатор на основі кислоти Льюїса або компонент каталізатора на основі кислоти Льюїса, як каталізатор ізомеризації або як компонент каталізатора ізомеризації, як каталізатор окислення або як компонент каталізатора окислення, як каталізатор альдольної конденсації або як компонент каталізатора альдольної конденсації, або як каталізатор реакції Принса або як компонент каталізатора реакції Принса.

55 Переважним є те, що формуваний виріб за представленим винаходом, описаний в даному документі, використовується як каталізатор окислення або як компонент каталізатора окислення, більш переважно як каталізатор епоксидування або як компонент каталізатора епоксидування, більш переважно як каталізатор епоксидування.

60 У випадку, коли формований виріб, відповідно до представленого винаходу, використовується як каталізатор окислення або як компонент каталізатора окислення,

формований виріб переважно використовується для реакції епоксидування органічної сполуки, що має принаймні один подвійний зв'язок C=C, переважно C2-C10 алкен, більш переважно C2-C5 алкен, більш переважно C2-C4 алкен, більш переважно C2 або C3 алкен, більш переважно пропен, більш переважно для епоксидування пропену перекисом водню як окислювачем, більш переважно для епоксидування пропену перекисом водню як окислювача в розчиннику, що містить спирт, переважно метанол.

Крім того, представлений винахід відноситься до процесу окислення органічної сполуки, що включає приведення органічної сполуки в контакт, переважно в безперервному режимі, з каталізатором, що містить формований виріб, відповідно до представленого винаходу, переважно для епоксидування органічної сполуки, більш переважно для епоксидування органічної сполуки, що має принаймні один подвійний зв'язок C=C, переважно алкен C2-C10, більш переважно алкен C2-C5, більш переважно алкен C2-C4, більш переважно алкен C2 або C3, більш переважно пропен.

Переважним є те, що перекис водню використовується як окислювач, при цьому реакцію окислення переважно проводять у розчиннику, більш переважно в розчиннику, що містить спирт, переважно метанол.

Відповідно до представленого винаходу можна уявити, що якщо перекис водню використовується як окислювач, перекис водню утворюється *in situ* під час реакції з водню та кисню, або з інших відповідних попередників. Більш переважно, термін "використання перекису водню як окислювача" або аналогічний, що використовується в контексті представленого винаходу, відноситься до варіанту здійснення, де перекис водню не утворюється *in situ*, а використовується як вихідний матеріал, переважно у формі розчину, переважно принаймні частково водний розчин, більш переважно водний розчин, зазначений переважно водний розчин має переважну концентрацію перекису водню в діапазоні від 20 до 60 масових %, більш переважно від 25 до 55 масових % у розрахунку на загальну масу.

Крім того, представлений винахід стосується способу одержання пропіленоксиду, що включає реакцію пропену, переважно в безперервному режимі, з перекисом водню в метанольному розчині в присутності каталізатора, що містить формований виріб, відповідно до представленого винаходу, для отримання пропіленоксиду.

Крім того, представлений винахід стосується застосування колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді як попередника зв'язуючої речовини для приготування хімічного формованого виробу, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, який має каркасний тип MFI та каркасну зв'язуючу речовину, що містить Si, O і Ti, формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину, отриману із зазначеного попередника зв'язуючої речовини, переважно для приготування формованого виробу, як описано даному документі, зазначений діоксид кремнію має об'єм на основі розподілу розмірів частинок, що характеризується значенням Dv10, щонайменше, 35 нанометрів, переважно в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv50, щонайменше, 45 нанометрів, переважно в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів і значення Dv90, щонайменше, 65 нанометрів, переважно в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначених як описується в довідковому прикладі 5, зазначений формований виріб переважно має загальний об'єм пор щонайменше 0,4 мл/г, визначений, як описується в довідковому прикладі 2, і міцність на роздавлювання, щонайменше, 6 Н, визначену, як описується в довідковому прикладі 3.

Згідно з додатковим аспектом, представлений винахід стосується суміші, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і яка має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, де суміш додатково містить колоїдну дисперсію діоксиду кремнію у воді, зазначений попередник зв'язуючої речовини має розподіл розмірів частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv10, щонайменше, 35 нанометрів, значенням Dv50, щонайменше, 45 нанометрів, і значенням Dv90, щонайменше, 65 нанометрів, визначене, як описується в довідковому прикладі 5.

Переважним є те, що суміш має пластичність в діапазоні від 500 до 3000 Н, більш переважно в діапазоні від 750 до 2000 Н, більш переважно в діапазоні від 1000 до 1500 Н, визначеному, як описується в довідковому прикладі 12.

Крім того, переважним є розподіл частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді на основі об'єму, який характеризується значенням Dv10 в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, більш

переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більше переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv50 в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів, і значення Dv90 в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначених, як описується в довідковому прикладі 5.

Переважає те, що розподіл частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію за розміром на основі об'єму є мономодальним розподілом.

Що стосується вмісту діоксиду кремнію в колоїдній дисперсії діоксиду кремнію у воді, то особливих обмежень немає. Переважає те, що колоїдна дисперсія діоксиду кремнію у воді містить діоксид кремнію в кількості в діапазоні від 25 до 65 масових %, більш переважно в діапазоні від 30 до 60 масових %, більш переважно в діапазоні від 35 до 55 масових % у розрахунку на загальну масу діоксиду кремнію та води.

Переважає те, що від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових % попередника зв'язуючої речовини складається з колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді.

Крім того, переважним є те, що від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % цеолітного матеріалу складається з Si, O, Ti та переважно H.

Що стосується кількості Ti, що міститься в цеолітному матеріалі, особливих обмежень не застосовується. Переважає цеолітний матеріал, який містить Ti в кількості в діапазоні від 0,2 до 5 масових %, більш переважно в діапазоні від 0,5 до 4 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,0 до 3 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,2 до 2,5 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,4 до 2,2 масових %, у розрахунку на загальну масу цеолітного матеріалу.

Переважає цеолітний матеріал, який являє собою силікаліт титану-1.

Крім того, переважним є те, що у суміші масове співвідношення цеолітного матеріалу, відносно суми цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини, розрахованого як SiO₂, знаходиться в діапазоні від 2 до 90 %, більш переважно в діапазоні від 5 до 70 %, більш переважно в діапазоні від 10 до 50 %, більш переважно в діапазоні від 15 до 30 %, більш переважно в діапазоні від 20 до 25 %.

Суміш може містити додаткові компоненти. Таким чином, переважним є те, що суміш додатково містить одну або більше добавок, більш переважно один або більше агентів, що модифікують в'язкість, або один або більше агентів, що утворюють мезопори, або один або більше агентів, що модифікують в'язкість, і один або більше агентів, що утворюють мезопори.

Переважає те, що від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % суміші складається з цеолітного матеріалу та попередника зв'язуючого. У разі, коли суміш додатково містить одну або більше добавок, бажано, щоб від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно, від 99,9 до 100 масових % суміші складаються з цеолітного матеріалу, попередника зв'язуючої речовини та однієї або декількох добавок.

Переважає те, що одна або декілька добавок є вибраними з групи, що складається з води, спиртів, органічних полімерів і сумішей двох або більше з них, де органічні полімери переважно вибирають із групи, що складається з целюлози, похідних целюлози, крохмалів, поліалкіленоксидів, полістиролів, поліакрилатів, поліметакрилатів, поліолефінів, поліамідів, поліефірів та суміші двох або більше з них, де органічні полімери більш переважно вибирають із групи, що складається з суміші простих ефірів целюлози, поліоксидів, поліефірів, поліоксидів та полімерів з двох або більше з них, де органічні полімери більш переважно вибирають із групи, що складається з метилцелюлози, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксидів, полістиролів та сумішей двох або більше з них, де більш переважно, один або більше добавок включають, більш переважно, складаються з води, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксиду та полістиролу.

У разі, коли одну або більше добавок вибирають із групи, що складається з води, спиртів, органічних полімерів і сумішей двох або більше з них, переважним є те, що у суміші масове співвідношення цеолітного матеріалу відносно однієї або більше добавок знаходиться в діапазоні від 0,3:1 до 1:1, більш переважно в діапазоні від 0,4:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,5:1 до 0,6:1.

У випадку, коли одна або декілька добавок включають похідну целюлози, переважно ефір целюлози, більш переважно карбоксиметилцелюлозу, переважним є те, що у суміші масове співвідношення цеолітного матеріалу відносно похідної целюлози, переважно ефір целюлози, більш переважно карбоксиметилцелюлоза, знаходиться в діапазоні від 10:1 до 53:1, більш

5 переважно в діапазоні від 15:1 до 40:1, більш переважно в діапазоні від 20:1 до 35:1.

У випадку, коли одна або декілька добавок містять поліетиленоксид, переважним є те, що у суміші масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до поліетиленоксиду було в діапазоні від 70:1 до 110:1, більш переважно в діапазоні від 75:1 до 100:1, більш переважно в діапазоні від 77:1 до 98:1.

10 У випадку, коли одна або декілька добавок містять полістирол, переважним є те, що у суміші масове співвідношення цеолітного матеріалу щодо полістиролу знаходиться в діапазоні від 2:1 до 8:1, більш переважно в діапазоні від 3:1 до 6:1, більш переважно в діапазоні від 3,5:1 до 5:1.

У випадку, коли одна або декілька добавок містять воду, переважним є те, що у суміші масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до води знаходиться в діапазоні

15 від 0,7:1 до 0,85:1, більш переважно в діапазоні від 0,72:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,74:1 до 0,79:1.

Особливо переважним є те, що одна або декілька добавок включає похідну целюлози, переважно ефір целюлози, більш переважно карбоксиметилцелюлозу, поліетиленоксид, полістирол і воду.

20 Згідно зі ще одним аспектом, представлений винахід відноситься до способу приготування суміші, що містить цеолітний матеріал, воду та діоксид кремнію, переважно для приготування суміші, як описується вище, процес, що включає

(i') забезпечення цеолітного матеріалу, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і який має каркасний тип MFI та

25 каркасну структуру, що містить Si, O та Ti;

(ii') забезпечення колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді, при цьому зазначений діоксид кремнію демонструє розподіл розмірів частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv_{10} , щонайменше, 35 нанометрів, переважно в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 45 до 70

30 нанометрів, значення Dv_{50} , щонайменше, 45 нанометрів, переважно в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів, і значення Dv_{90} , щонайменше, 65 нанометрів, переважно в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначений, як описується в довідковому

35 прикладі 5;

(iii') приготування суміші, що містить частинки цеолітного матеріалу, наведені на етапі (i'), і попередника зв'язуючої речовини, наведеного на етапі (ii').

Переважним є розподіл розмірів частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii') на основі об'єму, який характеризується значенням Dv_{10} в діапазоні від

40 35 до 80 нанометрів, переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометр, більш переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv_{50} в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометр, і значення Dv_{90} в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначених, як описується в

45 довідковому прикладі 5.

Крім того, переважним є розподіл розмірів частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii') на основі об'єму, який являє собою моноmodalний розподіл.

Що стосується вмісту діоксиду кремнію, що міститься в колоїдній дисперсії діоксиду кремнію у воді, переважним є те, що колоїдна дисперсія діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii') містить діоксид кремнію у кількості в діапазоні від 25 до 65 масових %, більш переважно в

50 діапазоні від 30 до 60 масових %, більш переважно в діапазоні від 35 до 55 масових %, виходячи з загальної маси кремнезему і води.

Переважним є те, що від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових % попередника зв'язуючої речовини відповідно до

55 етапу (ii') складається з колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді.

Крім того, переважним є те, що від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % цеолітного матеріалу відповідно до

60 етапу (i') складається з Si, O, Ti та переважно H.

Що стосується кількості Ti, що міститься в цеолітному матеріалі відповідно до етапу (i'), то

ніяких особливих обмежень не застосовується. Переважним є те, що цеолітний матеріал відповідно до етапу (i') містить Ti в кількості в діапазоні від 0,2 до 5 масових %, переважно в діапазоні від 0,5 до 4 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,0 до 3 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,2 до 2,5 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,4 до 2,2 масових %, у розрахунку на загальну масу цеолітного матеріалу.

Переважним є цеолітний матеріал відповідно до етапу (i'), який являє собою силікаліт титану-1.

Що стосується масового співвідношення цеолітного матеріалу щодо суми цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини, розрахованого як SiO_2 , у суміші, приготовленої відповідно до етапу (iii'). Переважним є те, що у суміші, приготівленій відповідно до етапу (iii'), масове співвідношення цеолітного матеріалу щодо суми цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини, розрахованого як SiO_2 , знаходиться в діапазоні від 2 до 90 %, більше переважно в діапазоні від 5 до 70 %, більш переважно в діапазоні від 10 до 50 %, більш переважно в діапазоні від 15 до 30 %, більш переважно в діапазоні від 20 до 25 %.

Суміш, приготовлена відповідно до етапу (iii'), може містити додаткові компоненти. Переважним є те, що суміш, приготовлена відповідно до етапу (iii'), додатково містить одну або декілька добавок, більш переважно один або декілька агентів, що модифікують в'язкість, або один або декілька мезопороутворюючих агентів, або один або більше агентів, що модифікують в'язкість, і один або більше мезопороутворюючих агентів.

У випадку, коли суміш, приготовлена відповідно до етапу (iii'), додатково містить одну або декілька добавок, бажано, щоб від 95 до 100 масових %, більш переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % суміші, приготовленої відповідно до етапу (iii'), складається з цеолітного матеріалу, попередника зв'язуючої речовини та одного або більше допоміжних речовин.

Переважним є те, що одна або декілька добавок є вибраними з групи, яка складається з води, спиртів, органічних полімерів і сумішей з двох або більше з них, де органічні полімери переважно вибирають із групи, яка складається з целюлози, похідних целюлози, крохмалів, поліалкіленоксидів, полістиролів, поліакрилатів, поліметакрилатів, поліолефінів, поліамідів, складних поліефірів та суміші з двох або більше з них, де органічні полімери більш переважно вибирають із групи, яка складається з суміші простих ефірів целюлози, поліалкіленоксидів, полістиролів та суміші з двох або більше з них, де органічні полімери більш переважно вибирають із групи, що складається з метилцелюлози, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксидів, полістиролів та сумішей з двох або більше з них, де більш переважно, одна або більше добавок включають, більш переважно, складаються з води, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксиду та полістиролу.

У випадку, коли суміш, приготовлена відповідно до етапу (iii'), містить одну або декілька добавок, переважним є те, що у суміші, приготівленій відповідно до етапу (iii'), масове співвідношення цеолітного матеріалу відносно однієї або декількох добавок добавки, знаходиться в діапазоні від 0,3:1 до 1:1, більш переважно в діапазоні від 0,4:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,5:1 до 0,6:1.

У випадку, коли суміш, приготовлена відповідно до етапу (iii) і піддана етапу (iv), містить похідну целюлози, переважно простий ефір целюлози, більш переважно карбоксиметилцелюлозу, переважним є те, що суміш, приготовлена відповідно до етапу (iii) і підданого дії етапу (iv) масове співвідношення цеолітного матеріалу відносно похідної целюлози, переважно, ефіру целюлози, більш переважно карбоксиметилцелюлози, знаходиться в діапазоні від 10:1 до 53:1, більш переважно в діапазоні від 15:1 до 40:1, більш переважно в діапазоні від 20:1 до 35:1.

У випадку, коли суміш, приготовлена відповідно до етапу (iii) і піддана етапу (iv), містить поліетиленоксид, переважним є те, що в суміші, приготівленій відповідно до етапу (iii) і піддана етапу (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до поліетиленоксиду знаходиться в діапазоні від 70:1 до 110:1, більш переважно в діапазоні від 75:1 до 100:1, більш переважно в діапазоні від 77:1 до 98:1;

У випадку, коли суміш, приготовлена відповідно до (iii) та піддана (iv), містить воду, переважним є те, що у суміші, приготовленої відповідно до (iii) та підданій (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу, відносно води, знаходиться в діапазоні від 0,7:1 до 0,85:1, більш переважно в діапазоні від 0,72:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,74:1 до 0,79:1.

Переважним є те, що приготування суміші відповідно до (iii) включало змішування в місильній машині або в міксері.

Крім того, переважним є те, що процес приготування суміші, що містить цеолітний матеріал, воду та діоксид кремнію, як описується в даному документі, складається зі стадій (i), (ii) та (iii).

Згідно з ще одним аспектом представленого винаходу, представлений винахід стосується суміші, переважно суміші, як описується в даному документі, яка може бути отримана або

отримується за способом, описаним в даному документі.

Даний винахід додатково ілюструється наступним набором варіантів здійснення та комбінацій варіантів здійснення, які є результатом залежностей і зворотних посилянь, як зазначено. Зокрема, зазначається, що в кожному випадку, коли згадується діапазон варіантів здійснення, наприклад, у контексті такого терміну, як "формований виріб за будь-яким одним з варіантів здійснення з 1 по 4", кожен варіант здійснення в даному діапазоні має на увазі чітко розкриті для фахівця, тобто формулювання цього терміну має розумітися фахівцем як синонім до "формований виріб за будь-яким одним з варіантів здійснення 1, 2, 3 та 4". Крім того, чітко зазначається, що наступний набір варіантів здійснення не є набором пунктів формули винаходу, що визначають ступінь захисту, а являє собою належно структуровану частину опису, спрямовану на загальні та переважні аспекти представленого винаходу.

1. Хімічний формований виріб, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і який має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, де формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначеного цеолітного матеріалу, зв'язуюча речовина містить Si та O, де формований виріб має загальний об'єм пор, щонайменше, 0,4 мл/г, визначений, як описується в довідковому прикладі 2, і міцність на роздавлювання, щонайменше, 6 Н, визначену, як описано у довідковому прикладі 3.

2. Формований виріб за варіантом здійснення 1, де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % цеолітного матеріалу, що міститься в формованому виробі, складається з Si, O, Ti та необов'язково Н.

3. Формований виріб за варіантом здійснення 1 або 2, де цеолітний матеріал містить Ti в кількості в діапазоні від 0,2 до 5 масових %, переважно в діапазоні від 0,5 до 4 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,0 до 3 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,2 до 2,5 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,4 до 2,2 масових %, розрахованих як елементарний Ti та на основі загальної маси цеолітний матеріал.

4. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 1-3, де цеолітним матеріалом, який міститься у формованому виробі, є силікаліт титану-1.

5. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-4, де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно, від 99,9 до 100 масових % зв'язуючої речовини, що міститься у формованому виробі, складається з Si та O.

6. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-5, що містить зв'язуючу речовину, розраховану як SiO₂, у кількості в діапазоні від 2 до 90 масових %, переважно в діапазоні від 5 до 70 масових %, більше переважно в діапазоні від 10 до 50 масових %, більш переважно в діапазоні від 15 до 30 масових %, більш переважно в діапазоні від 20 до 25 масових % у розрахунку на загальну масу формованого виробу.

7. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-6, де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % формованого виробу складається з цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини.

8. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-7, що містить мікропори, що мають діаметр пор у діапазоні від 0,1 до менше ніж 2 нм, визначений, як описується в довідковому прикладі 4, і мезопори, що мають діаметр пор у діапазоні від 2 до 50 нм, визначений, як описується в довідковому прикладі 4.

9. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-8, що демонструє загальний об'єм пор в діапазоні від 0,4 до 1,5 мл/г, переважно в діапазоні від 0,4 до 1,2 мл/г, більш переважно в діапазоні від 0,4-1,0 мл/г.

10. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-9, що має міцність на роздавлювання в діапазоні від 6 до 25 Н, переважно в діапазоні від 7 до 20 Н, більш переважно в діапазоні від 8 до 15 Н.

11. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-10, що являє собою пасмо, переважно має шестикутний, прямокутний, квадратний, трикутний, овальний або круглий поперечний переріз, більш переважно круглий поперечний переріз.

12. Формований виріб за варіантом здійснення 11, в якому поперечний переріз має діаметр

в діапазоні від 0,5 до 5 мм, переважно в діапазоні від 1 до 3 мм, більш переважно в діапазоні від 1,5 до 2 мм.

13. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-12, переважно 11 або 12, є екструдатом.

5 14. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-13, що має параметр звивистості щодо води в діапазоні від 1,0 до 2,5, переважно в діапазоні від 1,3 до 2,0, більш переважно в діапазоні від 1,6 до 1,8, більш переважно в діапазоні від 1,6 до 1,75, більш переважно в діапазоні від 1,6 до 1,72, визначеному, як описується в довідковому прикладі 11.

10 15. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-14, що має питому площу поверхні за БЕТ в діапазоні від 300 до 450 м²/г, переважно в діапазоні від 310 до 400 м²/г, більш переважно в діапазоні від 320 до 375 м²/г, визначено, як описується в довідковому прикладі 6.

15 16. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-15, що демонструє кристалічність в діапазоні від 50 до 100 %, переважно в діапазоні від 50 до 90 %, більш переважно в діапазоні від 50 до 80 %, визначається, як описується в довідковому прикладі 7.

17. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-16, що демонструє активність пропіленоксиду, щонайменше, 4,5 масових %, переважно в діапазоні від 4,5 до 11 масових %, більш переважно в діапазоні від 4,5 до 10 масових %, визначено, як описується в довідковому прикладі 9.

20 18. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення 1-17, що демонструє швидкість перепаду тиску в діапазоні від 0,005 до 0,019 бар (абс.)/хв., переважно в діапазоні від 0,006 до 0,017 бар (абс.)/хв., більше переважно в діапазоні від 0,007 до 0,015 бар (абс.)/хв., що визначається, як описується в довідковому прикладі 9.

25 19. Формований виріб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 1 по 18, що використовується як каталізатор у реакції одержання пропіленоксиду з пропену та перекису водню, де каталізатор демонструє конверсію перекису водню в діапазоні від 90 до 95 %, тобто закінчується безперервною реакцією епоксидування, як описується в довідковому прикладі 10, при температурі охолоджуючого середовища в діапазоні від 55 до 56 °C за одну тривалість реакції в діапазоні від 200 до 600 годин, переважно за тривалість реакції в діапазоні від 300 до 600 годин, більш переважно за тривалість реакції в діапазоні від 350 до 600 годин, де термін "тривалість реакції" відноситься до тривалості безперервної реакції епоксидування без регенерації каталізатора.

30 20. Спосіб приготування хімічного формованого виробу, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і який має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, формований виріб, що додатково містить зв'язуючу речовину для зазначеного цеолітного матеріалу, зв'язуюча речовина містить Si та O, переважно для приготування хімічного формованого виробу згідно з будь-яким одним із варіантів здійснення з 1 по 19, де спосіб включає

40 (i) забезпечення цеолітного матеріалу, що демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, що має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti;

45 (ii) забезпечення попередника зв'язуючої речовини, що містить колоїдну дисперсію діоксиду кремнію у воді, зазначений попередник зв'язуючої речовини має розподіл розмірів частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv10, щонайменше, 35 нанометрів, значенням Dv50, щонайменше, 45 нанометрів і значенням Dv90, щонайменше, 65 нанометрів, визначене, як описується в довідковому прикладі 5;

(iii) приготування суміші, що містить цеолітний матеріал, наведений в етапі (i), і попередник зв'язуючої речовини, наведений у етапі (ii);

50 (iv) формування суміші, отриманої відповідно до етапу (iii), отримання попередника формованого виробу;

(v) приготування суміші, що містить попередник формованого виробу, отриманий відповідно до етапу (iv), та воду, і піддавання суміші водної обробки в гідротермічних умовах, одержання обробленого водою попередника формованого виробу;

55 (vi) прожарювання обробленого водою попередника формованого виробу в газовій атмосфері з отриманням формованого виробу.

60 21. Спосіб за варіантом здійснення 20, в якому розподіл частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii) на основі об'єму характеризується значенням Dv10 в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv50 в діапазоні від 45 до 125

нанометрів, переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів і значення Dv_{90} в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначених, як описується в довідковому прикладі 5.

5 22. Спосіб за варіантом здійснення 20 або 21, в якому розподіл розміру частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii) є мономодальним розподілом.

23. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-22, де колоїдна дисперсія діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii) містить діоксид кремнію в кількості в діапазоні від 25 до 65 масових %, переважно в діапазоні від 30 до 60 масових %, більш переважно в діапазоні від 35 до 55 масових % у розрахунку на загальну масу діоксиду кремнію та води.

10 24. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-23, в якому від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових % попередника зв'язуючої речовини відповідно до етапу (ii) складається з колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді.

15 25. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-24, де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % цеолітного матеріалу відповідно до етапу (i) складається з Si, O, Ti та переважно H.

20 26. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-25, де цеолітний матеріал відповідно до етапу (i) містить Ti в кількості в діапазоні від 0,2 до 5 масових %, переважно в діапазоні від 0,5 до 4 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,0 до 3 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,2 до 2,5 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,4 до 2,2 масових % у розрахунку на загальну масу цеолітного матеріалу.

25 27. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 20 по 26, де цеолітним матеріалом відповідно до етапу (i) є силікаліт титану-1.

28. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-27, в якому в суміші, приготовленої відповідно до етапу (iii) і підданій етапу (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу відносно суми цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини, розрахованої як SiO_2 , знаходиться в діапазоні від 2 до 90 %, переважно в діапазоні від 5 до 70 %, більш переважно в діапазоні від 10 до 50 %, більш переважно в діапазоні від 15 до 30 %, більш переважно в діапазоні від 20 до 25 %.

29. Спосіб за будь-яким одним із варіантів 20-28, де суміш, приготовлена відповідно до етапу (iii) і піддана етапу (iv), додатково містить одну або декілька добавок, переважно один або більше агентів, що модифікують в'язкість, або один або більше агентів, що утворюють мезопори, або один або більше агентів, що модифікують в'язкість, і один або більше агентів, що утворюють мезопори.

30. Спосіб за варіантом здійснення 29, де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % суміші, приготовленої відповідно до етапу (iii) і підданої етапу (iv), складається з цеолітного матеріалу, попередника зв'язуючої речовини та однієї або декількох добавок.

31. Спосіб за варіантом здійснення 29 або 30, де одну або декілька добавок вибирають із групи, що складається з води, спиртів, органічних полімерів та сумішей двох або декількох із них, де органічні полімери переважно вибирають із групи, що складається з целюлоз, похідних целюлози, крохмалів, поліалкіленоксидів, полістиролів, поліакрилатів, поліметакрилатів, поліолефінів, поліамідів, складних поліефірів та сумішей двох або більше з них, де органічні полімери вибираються більш переважно з групи, що складається з простих ефірів целюлози, поліалкіленоксидів, полістиролів і сумішей двох або більше з них, де органічні полімери більш переважно вибирають із групи, що складається з метилцелюлози, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксидів, полістиролів або більше сумішей з них, де більш переважно, одна або декілька добавок включають, більш переважно, складаються з води, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксиду та полістиролу.

32. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 29 по 31, де в суміші, приготовленої відповідно до етапу (iii) і підданій етапу (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу відносно однієї або декількох добавок знаходиться в діапазоні від 0,3:1 до 1:1, переважно діапазон від 0,4:1 до 0,8:1, більш переважно діапазон від 0,5:1 до 0,6:1.

33. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 29-32, в якому в суміші, приготовленої відповідно до етапу (iii) і підданій етапу (iv),

масове співвідношення цеолітного матеріалу щодо похідної целюлози, переважно, простого ефіру целюлози, більш переважно карбоксиметилцелюлози, знаходиться в діапазоні від 10:1 до

53:1, переважно в діапазоні від 15:1 до 40:1, більш переважно в діапазоні від 20:1 до 35:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до поліетиленоксиду знаходиться в діапазоні від 70:1 до 110:1, переважно в діапазоні від 75:1 до 100:1, більш переважно в діапазоні від 77:1 до 98:1;

5 масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до полістиролу знаходиться в діапазоні від 2:1 до 8:1, переважно в діапазоні від 3:1 до 6:1, більш переважно в діапазоні від 3,5:1 до 5:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до води знаходиться в діапазоні від 0,7:1 до 0,85:1, переважно в діапазоні від 0,72:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,74:1 до 0,79:1.

34. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-33, в якому приготування суміші відповідно до етапу (iii) включає змішування в місильній машині або в міксері.

35. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-34, де відповідно до етапу (iv), суміш, отримана відповідно до етапу (iii), формується у вигляді пасма, переважно пасма, що має круглий поперечний переріз, де пасмо має круглий поперечний переріз, що має діаметр переважно в діапазоні від 0,5 до 5 мм, більш переважно в діапазоні від 1 до 3 мм, більш переважно в діапазоні від 1,5 до 2 мм.

36. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-35, де суміш, отримана відповідно до етапу (iii) і піддана етапу (iv), має пластичність в діапазоні від 500 до 3000 Н, переважно в діапазоні від 750 до 2000 Н, більш переважно в діапазоні від 1000 до 1500 Н, що визначається, як описується в ілюстративному прикладі 12.

37. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 20 по 36, в якому формування відповідно до етапу (iv) включає екструдування суміші, отриманої відповідно до етапу (iii).

38. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 20 по 37, де формування відповідно до етапу (iv) додатково включає висушування попередника формованого виробу в газовій атмосфері, причому зазначене висушування переважно здійснюють при температурі газової атмосфери в діапазоні від 80 до 160 °C, переважно в діапазоні від 100 до 140 °C, більш переважно в діапазоні від 110 до 130 °C, при цьому атмосферний газ переважно містить азот, кисень або суміш при цьому газова атмосфера є більш переважно киснем, повітрям або збідненим повітрям.

39. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-38, переважно варіанту здійснення 38, де формований виріб відповідно до етапу (iv) додатково включає прожарювання переважно висушеного попередника формованого виробу в газовій атмосфері, при цьому прожарювання переважно здійснюють при температурі газової атмосфери в діапазоні від 450 до 530 °C, переважно в діапазоні від 470 до 510 °C, більш переважно в діапазоні від 480 до 500 °C, при цьому газова атмосфера містить переважно азот, кисень або їх суміш, де газова атмосфера є більш переважно киснем, повітрям або збідненим повітрям.

40. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 20 по 39, в якому в суміші, приготуваній відповідно до (v), масове співвідношення попередника формованого виробу відносно води знаходиться в діапазоні від 1:1 до 1:30, переважно в діапазоні від 1:5 до 1:25, більш переважно в діапазоні від 1:10 до 1:20.

41. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-40, де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно, від 99,9 до 100 масових % суміші, приготуваної відповідно до етапу (v), складається з попередника формованого виробу та води.

42. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-41, де обробка водою відповідно до етапу (v) включає температуру суміші в діапазоні від 100 до 200 °C, переважно в діапазоні від 125 до 175 °C, більш переважно в діапазоні від 130 до 160 °C, більш переважно в діапазоні від 135 до 155 °C, більш переважно в діапазоні від 140 до 150 °C.

43. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 20 по 42, в якому обробку водою відповідно до етапу (v) здійснюють під автогенним тиском, переважно в автоклаві.

44. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-43, де обробку водою відповідно до етапу (v) проводять протягом 6-10 годин, переважно від 7 до 9 годин, більш переважно протягом 7,5-8,5 годин.

45. Спосіб за будь-яким одним із варіантів втілення з 20 по 44, де етап (v) додатково включає відокремлення обробленого водою попередника формованого виробу від суміші, отриманої в результаті обробки водою.

46. Спосіб за варіантом здійснення 45, в якому відокремлення обробленого водою попередника формованого виробу від суміші, отриманої в результаті обробки водою, включає піддавання суміші, отриманої при обробці водою, розділенню твердої речовини та рідини,

переважно промивання відокремленого попередника, і переважно висушування переважно промитого попередника.

47. Спосіб за варіантом здійснення 46, в якому розділення твердої речовини та рідини відповідно до етапу (v) включає фільтрацію, або центрифугування, або фільтрацію та центрифугування.

48. Спосіб за варіантом здійснення 46 або 47, де промивання відповідно до етапу (v) включає промивання попередника принаймні один раз системою рідкого розчинника, де система рідких розчинників переважно містить один або декілька з води, спирту та суміші двох або більше з них, причому оброблений водою попередник формованого виробу більш переважно промивають водою.

49. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 46-48, де висушування відповідно до етапу (v) включає висушування попередника в газовій атмосфері, де висушування переважно проводять при температурі газової атмосфери в діапазоні від 80 до 160 °C, більш переважно в діапазоні від 100 до 140 °C, більш переважно в діапазоні від 110 до 130 °C, де газова атмосфера переважно містить азот, кисень або їх суміш, де газова атмосфера більше бажано кисень, повітря або згущене повітря.

50. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 20-49, де прожарювання відповідно до етапу (vi) проводять при температурі газової атмосфери в діапазоні від 400 до 490 °C, переважно в діапазоні від 420 до 470 °C, більш переважно в діапазоні від 440 до 460 °C, де газова атмосфера переважно містить азот, кисень або їх суміш, де газова атмосфера переважно являє собою кисень, повітря або збіднене повітря.

51. Спосіб за будь-яким з варіантів здійснення з 20 до 50, що складається з (i), (ii), 30 (iii), (iv), (v) та (vi).

52. Хімічний формований виріб, що містить частинки цеолітного матеріалу, що демонструє ізотеру адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначених частинок зв'язуючої речовини, що містить Si та O, переважно хімічний формований виріб згідно з будь-яким одним із варіантів здійснення з 1 по 19, який можна отримати або одержати за допомогою процесу згідно з будь-яким одним із варіантів здійснення з 20 по 51.

53. Застосування формованого виробу згідно з будь-яким одним із варіантів здійснення з 1 по 19 або згідно з варіантом здійснення 52 як адсорбенту, абсорбенту, каталізатора або компонента каталізатора, переважно як каталізатора або як компонента каталізатора, більш переважно як каталізатор на основі кислоти Льюїса або компонент каталізатора на основі кислоти Льюїса, як каталізатор ізомеризації або як компонент каталізатора ізомеризації, як каталізатор окислення або як компонент каталізатора окислення, як каталізатор альдольної конденсації або як компонент каталізатора альдольної конденсації, або як каталізатор реакції Принса або як компонент каталізатора реакції Принса.

54. Застосування за варіантом здійснення 53 як каталізатора окислення або як компонента каталізатора окислення, переважно як каталізатора епоксидування або як компонента каталізатора епоксидування, більш переважно як каталізатора епоксидування.

55. Застосування за варіантом здійснення 54 для реакції епоксидування органічної сполуки, що має принаймні один подвійний зв'язок C=C, переважно C2-C10 алкен, більш переважно C2-C5 алкен, більш переважно C2-C4 алкен, більш переважно C2 або C3 алкен, більш переважно пропен, більш переважно для епоксидування пропену пероксидом водню як окислювачем, більш переважно для епоксидування пропену пероксидом водню як окислювачем в розчиннику, що містить спирт, переважно метанол.

56. Спосіб окислення органічної сполуки, що включає приведення органічної сполуки в контакт, переважно в безперервному режимі, з каталізатором, що включає формований виріб згідно з будь-яким одним із варіантів здійснення з 1 по 19 або згідно з варіантом здійснення 52, переважно для епоксидування органічної сполуки, більш переважно для епоксидування органічної сполуки, що має принаймні один подвійний зв'язок C=C, переважно C2-C10 алкен, більш переважно C2-C5 алкен, більш переважно C2-C4 алкен, більш переважно C2 або C3 алкен, більш переважно пропен.

57. Спосіб за варіантом здійснення 56, де перекис водню використовується як окислювач, де реакцію окислення переважно проводять у розчиннику, більш переважно в розчиннику, що містить спирт, переважно метанол.

58. Спосіб одержання пропіленоксиду, що включає взаємодію пропену, переважно в безперервному режимі, з пероксидом водню в метанольному розчині в присутності каталізатора, що містить формований виріб згідно з будь-яким одним з варіантів здійснення 1-

19 або згідно з варіантом здійснення 52 для отримання пропіленоксиду.

59. Застосування колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді як попередника зв'язуючої речовини для приготування хімічного формованого виробу, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і який має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину, отриману з зазначеного попередника зв'язуючої речовини, переважно для приготування формованого виробу відповідно до будь-якого одного з варіантів здійснення з 1 по 19, причому зазначений діоксид кремнію має розмір частинок на основі об'єму розподілу, що характеризується значенням Dv_{10} , щонайменше, 35 нанометрів, переважно в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv_{50} , щонайменше, 45 нанометрів, переважно в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів, і значення Dv_{90} , щонайменше, 65 нанометрів, переважно в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначених, як описується в довідковому прикладі 5, зазначений формований виріб переважно має загальний об'єм пор, щонайменше, 0,4 мл/г, визначений, як описується в довідковому прикладі 2, і міцність на роздавлювання, щонайменше, 6 Н, визначену, як описується в довідковому прикладі 3.

Представлений винахід додатково ілюструється наступним набором варіантів здійснення та комбінацій варіантів здійснення, що є результатом зазначених залежностей і зворотних посилянь, як зазначено. Зокрема, зазначається, що в кожному випадку, коли згадується діапазон варіантів здійснення, наприклад, у контексті такого терміну, як "Суміш за будь-яким з варіантів здійснення 1'-4'", мається на увазі кожен варіант здійснення в даному діапазоні має бути явно розкритим для фахівця, тобто формулювання згаданого терміну має розумітися фахівцем як синонім до "Суміш за будь-яким з варіантів здійснення 1', 2', 3' та 4'". Крім того, чітко зазначається, що наступний набір варіантів здійснення не є набором пунктів формули винаходу, що визначає ступінь захисту, а являє собою належно структуровану частину опису, спрямовану на загальні та переважні аспекти представленого винаходу.

1'. Суміш, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і яка має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, суміш додатково містить колоїдну дисперсію діоксиду кремнію у воді, зазначений попередник зв'язуючої речовини має розподіл розмірів частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv_{10} , щонайменше, 35 нанометрів, значенням Dv_{50} , щонайменше, 45 нанометрів і значенням Dv_{90} , щонайменше, 65 нанометрів, визначених, як описано, у довідковому прикладі 5.

2'. Суміш за варіантом здійснення 1', що має пластичність в діапазоні від 500 до 3000 Н, переважно в діапазоні від 750 до 2000 Н, більш переважно в діапазоні від 1000 до 1500 Н, визначену, як описується в довідковому прикладі 12.

3'. Суміш за варіантом здійснення 1' або 2', де розподіл розміру частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді на основі об'єму характеризується значенням Dv_{10} в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv_{50} в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів і значення Dv_{90} в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначених, як описується в довідковому прикладі 5.

4'. Суміш за будь-яким одним з варіантів втілення 1'-3', де розподіл частинок за розміром на основі об'єму колоїдної дисперсії діоксиду кремнію є моноmodalьним розподілом.

5'. Суміш за будь-яким одним з варіантів здійснення 1'-4', де колоїдна дисперсія діоксиду кремнію у воді містить діоксид кремнію в кількості в діапазоні від 25 до 65 масових %, переважно в діапазоні від 30 до 60 масових %, більш переважно в діапазоні від 35 до 55 масових % від загальної маси діоксиду кремнію та води.

6'. Суміш за будь-яким одним із варіантів здійснення 1'-5', де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно, від 99 до 100 масових % попередника зв'язуючої речовини складається з колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді.

7'. Суміш за будь-яким одним з варіантів здійснення 1'-6', де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % цеолітного матеріалу складаються з Si, O, Ti та переважно Н.

8'. Суміш за будь-яким одним із варіантів здійснення 1'-7', де цеолітний матеріал містить Ti в кількості в діапазоні від 0,2 до 5 масових %, переважно в діапазоні від 0,5 до 4 масових %, більше переважно в діапазоні від 1,0 до 3 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,2 до 2,5 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,4 до 2,2 масових % у розрахунку на загальну масу цеолітного матеріалу, де цеолітним матеріалом переважно є силікаліт титану-1.

9'. Суміш за будь-яким одним із варіантів здійснення 1'-8', де в суміші масове співвідношення цеолітного матеріалу відносно суми цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини, розрахованого як SiO₂, знаходиться в діапазоні від 2 до 90 %, переважно в діапазоні від 5 до 70 %, більш переважно в діапазоні від 10 до 50 %, більш переважно в діапазоні від 15 до 30 %, більш переважно в діапазоні від 20 до 25 %.

10'. Суміш за будь-яким одним із варіантів здійснення 1'-9', додатково містить одну або більше добавок, переважно один або більше агентів, що модифікують в'язкість, або один або більше агентів, що утворюють мезопор, або один або більше агентів, що модифікують в'язкість, і один або більше агентів, що утворюють мезопори.

11'. Суміш за будь-яким одним із варіантів здійснення від 1' до 10', де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно, від 99,9 до 100 масових % суміші складається з цеолітного матеріалу, попередника зв'язуючої речовин та однієї або декількох добавок.

12'. Суміш за будь-яким одним із варіантів здійснення 1'-11', де одна або більше добавок вибирають із групи, що складається з води, спиртів, органічних полімерів та сумішей двох або більше з них, де органічні полімери вибирають переважно із групи, яка складається з целюлози, похідних целюлози, крохмалів, поліалкіленоксидів, полістиролів, поліакрилатів, поліметакрилатів, поліолефінів, поліамідів, поліефірів та сумішей двох або більше з них, де органічні полімери вибирають із групи, яка складається з простих ефірів целюлози, поліалкіленоксидів, полістиролів і сумішей двох або більше їх, де органічні полімери більш переважно вибирають із групи, яка складається з метилцелюлози, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксидів, полістиролів, з двох або більше з них, де більш переважно, одна або декілька добавок включають, більш переважно складаються з води, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксиду та полістиролу.

13'. Суміш за варіантом здійснення 12', де в суміші масове співвідношення цеолітного матеріалу щодо однієї або декількох добавок знаходиться в діапазоні від 0,3:1 до 1:1, переважно в діапазоні від 0,4:1 до 1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,5:1 до 0,6:1.

14'. Суміш за варіантом здійснення 12' або 13', де в суміші, масове співвідношення цеолітного матеріалу щодо похідної целюлози, переважно, ефіру целюлози, більш переважно карбоксиметилцелюлози, знаходиться в діапазоні від 10:1 до 53:1, переважно в діапазоні від 15:1 до 40:1, більш переважно в діапазоні від 20:1 до 35:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до поліетиленоксиду знаходиться в діапазоні від 70:1 до 110:1, переважно в діапазоні від 75:1 до 100:1, більш переважно в діапазоні від 77:1 до 98:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до полістиролу знаходиться в діапазоні від 2:1 до 8:1, переважно в діапазоні від 3:1 до 6:1, більш переважно в діапазоні від 3,5:1 до 5:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до води знаходиться в діапазоні від 0,7:1 до 0,85:1, переважно в діапазоні від 0,72:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,74:1 до 0,79:1.

15'. Спосіб приготування суміші, що містить цеолітний матеріал, воду та діоксид кремнію, переважно для приготування суміші згідно з будь-яким одним із варіантів здійснення 1'-14', де спосіб включає

етап (i') забезпечення цеолітного матеріалу, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, визначену, як описується в довідковому прикладі 1, і який має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti;

етап (ii') забезпечення колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді, при цьому зазначений діоксид кремнію демонструє розподіл розмірів частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv₁₀, щонайменше, 35 нанометрів, переважно в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, більше переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv₅₀, щонайменше, 45 нанометрів, переважно в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів, і значення Dv₉₀, щонайменше, 65 нанометрів, переважно в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш

переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначених, як описується в довідковому прикладі 5;

етап (iii') приготування суміші, що містить частинки цеолітного матеріалу, наведеного в етапі (i'), і попередника зв'язуючої речовини, наведеного в етапі (ii').

16'. Спосіб за варіантом здійснення 15', де розподіл частинок колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii') на основі об'єму характеризується значенням Dv_{10} в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, переважно в діапазоні від 40 до 75 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 45 до 70 нанометрів, значення Dv_{50} в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, переважно в діапазоні від 55 до 115 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 65 до 105 нанометрів і значення Dv_{90} в діапазоні від 65 до 200 нанометрів, переважно в діапазоні від 85 до 180 нанометрів, більш переважно в діапазоні від 95 до 160 нанометрів, визначених, як описано у довідковому прикладі 5.

17'. Спосіб за варіантом здійснення 15' або 16', в якому розподіл частинок за розміром колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii') є моноmodalним розподілом.

18'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 15'-17', де колоїдна дисперсія діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii') містить діоксид кремнію в кількості в діапазоні від 25 до 65 масових %, переважно в діапазоні від 30 до 60 масових %, більш переважно в діапазоні від 35 до 55 масових % у розрахунку на загальну масу діоксид кремнію та води.

19'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 15'-18', де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових % попередника зв'язуючої речовини відповідно до етапу (ii') складаються з колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді.

20'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 15'-19', де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % цеолітного матеріалу відповідно до етапу (i') складаються з Si, O, Ti та переважно H.

21'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 15'-20', де цеолітний матеріал відповідно до етапу (i') містить Ti в кількості в діапазоні від 0,2 до 5 масових %, переважно в діапазоні від 0,5 до 4 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,0 до 3 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,2 до 2,5 масових %, більш переважно в діапазоні від 1,4 до 2,2 масових %, в розрахунку на загальну масу цеолітного матеріалу.

22'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 15' по 21', де цеолітним матеріалом відповідно до етапу (i') є силікаліт титану-1.

23'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 15'-22', в якому в суміші, підготовленій відповідно до етапу (iii'), масове співвідношення цеолітного матеріалу відносно суми цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини, розрахованого як SiO_2 , знаходиться в діапазоні від 2 до 90 %, переважно в діапазоні від 5 до 70 %, більш переважно в діапазоні від 10 до 50 %, більш переважно в діапазоні від 15 до 30 %, більш переважно в діапазоні від 15 до 30 %, більш переважно в діапазоні від 20 до 25 %.

24'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 15'-23', в якому суміш, приготовлена відповідно до етапу (iii'), додатково містить одну або декілька добавок, переважно один або більше агентів, що модифікують в'язкість, або один або більше агентів, що утворюють мезопори, або один або більше агентів, що модифікують в'язкість, і один або більше агентів, що утворюють мезопори.

25'. Спосіб за варіантом здійснення 24', де від 95 до 100 масових %, переважно від 98 до 100 масових %, більш переважно від 99 до 100 масових %, більш переважно від 99,5 до 100 масових %, більш переважно від 99,9 до 100 масових % суміші, приготовленої відповідно до етапу (iii'), складається з цеолітного матеріалу, попередника зв'язуючої речовини та однієї або декількох добавок.

26'. Спосіб за варіантом здійснення 24' або 25', де одну або декілька добавок вибирають із групи, що складається з води, спиртів, органічних полімерів та сумішей двох або більше з них, де органічні полімери переважно вибирають із групи, що складається з целюлози, похідних целюлози, крохмалів, поліалкіленоксидів, полістиролів, поліакрилатів, поліметакрилатів, поліолефінів, поліамідів, складних поліефірів та сумішей двох або більше з них, де органічні полімери є більш переважно вибирають із групи, що складається з простих ефірів целюлози, поліалкіленоксидів, полістиролів та сумішей двох або більше їх, де органічні полімери більш переважно вибирають із групи, що складається з метилцелюлози, карбоксиметилцелюлози, поліетиленоксидів, полістиролів та сумішей двох або більше з них, де переважно, одна або декілька добавок включають, більш переважно, складаються з води, карбоксиметилцелюлози,

поліетиленоксиду та полістилу.

27'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 24'-26', де в суміші, приготовленої відповідно до етапу (iii'), масове відношення цеолітного матеріалу щодо однієї або декількох добавок знаходиться в діапазоні від 0,3:1 до 1:1, переважно в діапазоні від 0,4:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,5:1 до 0,6:1.

28'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 24'-27', в якому в суміші, приготовленої відповідно до етапу (iii) і підданій етапу (iv),

масове співвідношення цеолітного матеріалу щодо похідної целюлози, переважно, ефіру целюлози, більш переважно карбоксиметилцелюлози, знаходиться в діапазоні від 10:1 до 53:1, переважно в діапазоні від 15:1 до 40:1, більш переважно в діапазоні від 20:1 до 0,5:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до поліетиленоксиду знаходиться в діапазоні від 70:1 до 110:1, переважно в діапазоні від 75:1 до 100:1, більш переважно в діапазоні від 77:1 до 98:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до полістиролу знаходиться в діапазоні від 2:1 до 8:1, переважно в діапазоні від 3:1 до 6:1, більш переважно в діапазоні від 3,5:1 до 5:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу по відношенню до води знаходиться в діапазоні від 0,7:1 до 0,85:1, переважно в діапазоні від 0,72:1 до 0,8:1, більш переважно в діапазоні від 0,74:1 до 0,79:1.

29'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення 15'-28', в якому приготування суміші відповідно до етапу (iii) включає змішування в місильній машині або в міксері.

30'. Спосіб за будь-яким одним із варіантів здійснення з 15' по 29', що складається з етапів (i), (ii) та (iii).

31'. Суміш, переважно суміш за будь-яким одним із варіантів здійснення 1'-14', яку можна отримати або одержати за допомогою способу згідно з будь-яким одним із варіантів здійснення 15'-29'.

32'. Використання суміші відповідно до будь-якого одного із варіантів здійснення 1'-14' або згідно з варіантом здійснення 31' для приготування хімічного формованого виробу, переважно хімічного формованого виробу відповідно до будь-якого одного із варіантів здійснення з 1 по 19 або згідно з варіантом здійснення 52.

Представлений винахід додатково ілюструється наступними ілюстративними прикладами, прикладами та порівняльними прикладами.

Довідковий приклад 1: Визначення ізотерм адсорбції/десорбції N₂

Ізотерми адсорбції/десорбції азоту були визначені при 77 K згідно зі способом, описаним у DIN 66131. Ізотерми при температурі рідкого азоту вимірювали за допомогою Micrometrics ASAP 2020M та системи Tristar.

Довідковий приклад 2: Визначення загального об'єму пор

Загальний об'єм пор визначали за способом інтрузійної ртутної порометрії згідно з DIN 66133.

Довідковий приклад 3: Визначення міцності на роздавлення

Міцність на роздавлення, як зазначено в контексті представленого винаходу, слід розуміти як визначену за допомогою машини для випробування міцності на роздавлення Z2.5/TS1S, постачальник Zwick GmbH & Co., D-89079 Ulm, Germany. Щодо основ цієї машини та її роботи, дивіться посилання на відповідний посібник інструкцій "Register 1: Betriebsanleitung / Sicherheitshandbuch für die Material-Prüfmaschine Z2.5/TS1S", version 1.5, December 2001 by Zwick GmbH & Co. Technische Dokumentation, August-Nagel-Strasse 11, D-89079 Ulm, Germany. Машина була обладнана нерухомим горизонтальним столом, на якому розміщувалося пасмо. Плунжер діаметром 3 мм, який вільно переміщався у вертикальному напрямку, приводив в дію пасмо до нерухомого столу. Апарат працював з попереднім зусиллям 0,5 Н, швидкістю зсуву під попереднім зусиллям 10 мм/хв і швидкістю наступного випробування 1,6 мм/хв. Вертикально рухомий плунжер був з'єднаний з тензодатчиком для підйому зусиль і під час вимірювання переміщався до нерухомого поворотного столу, на якому розташовується досліджуваний формований виріб (пасмо), таким чином притискаючи пасмо до столу. Плунжер застосовували до пасма перпендикулярно їх поздовжній осі. У зазначеній машині дане пасмо, як описано нижче, піддавали зростаючому зусиллю за допомогою плунжера, поки пасмо не було розчавленим. Сила, з якою пасмо роздавлюється, називається силою роздавлення пасм. Контроль експерименту здійснювався за допомогою комп'ютера, який реєстрував та оцінював результати вимірювань. Отримані значення є середніми значеннями вимірювань для 10 пасм у кожному випадку.

Довідковий приклад 5: Визначення значень Dv10, Dv50 та Dv90

Зразки аналізували за допомогою Zetasizer Nano від Malvern Instruments GmbH, Herrenberg, Germany. Спочатку визначали значення pH даної проби, щоб дозволити розведення в тому ж діапазоні pH. Зразки розбавляли водою Millipore, pH=9,1, до концентрації вимірювання 0,005 %, а потім фільтрували (5 мікрометрів). Вимірювання проводили при 25 °C.

5 Довідковий приклад 6: Визначення питомої площі поверхні за БЕТ

Питома площа поверхні за БЕТ визначалася шляхом фізичної адсорбції азоту при 77 K відповідно до способу, розкритого в DIN 66131. Ізотерми сорбції N₂ при температурі рідкого азоту вимірювали за допомогою Micrometrics ASAP 2020M та системи Tristar для визначення питомої площі поверхні за БЕТ.

10 Довідковий приклад 7: Порошкова рентгенівська дифракція та визначення кристалічності

Дані порошкової рентгенівської дифракції (PXRD) збирали за допомогою дифрактометра (D8 Advance Series II, Bruker AXS GmbH), оснащеного детектором LYNX-EYE, який працює із рентгенівською трубкою з мідним анодом, який працює при 40 кВ і 40 мА. Геометрія була Брегга-Брентано, а розсіювання в повітрі було зменшено за допомогою екрана розсіювання повітря.

15 Обчислення кристалічності: Кристалічність зразків визначали за допомогою програмного забезпечення DIFFRAC.EVA, наданого Bruker AXS GmbH, Karlsruhe. Спосіб описаний на сторінці 121 посібника користувача. Для розрахунку були використані параметри за замовчуванням.

20 Обчислення фазового складу: Фазовий склад був обчислений на основі вихідних даних за допомогою програмного забезпечення для моделювання DIF-FRAC.TOPAS, наданого Bruker AXS GmbH, Karlsruhe. Для моделювання дифракційної картини використовувалися кристалічні структури ідентифікованих фаз, інструментальні параметри, а також розміри кристалітів окремих фаз. Це відповідало даним на додаток до функції моделювання інтенсивності фону.

25 Збір даних: Зразки гомогенізували в ступці, а потім пресували в стандартний плоский тримач зразка, наданий Bruker AXS GmbH for Bragg-Brentano geometry data collection. Плоска поверхня була досягнута за допомогою скляної пластини для стиснення та розрівнювання порошку зразка. Дані були зібрані з кутового діапазону від 2 до 70° 2Theta з розміром кроку 0,02° 2Theta, тоді як щільність розбіжності була встановлена на кут 0,1°. Вміст кристалів описує інтенсивність кристалічного сигналу до загальної інтенсивності розсіювання. (User Manual for DIFFRAC.EVA, Bruker AXS GmbH, Karlsruhe.)

30 Довідковий приклад 8: Визначення значення C (константа БЕТ C)

Значення C визначали звичайним розрахунком ((нахил/точка перетину)+1) на основі графіка значення BET $1/(V((p/p_0)-1))$ від p/p_0 , як відомого фахівцеві. p являє собою парціальний тиск пари газоподібного адсорбату, що знаходиться в рівновазі з поверхнею при 77,4 K (так званого рідкого азоту), в Па, p_0 являє собою тиск насиченого газу адсорбату, в Па, та V являє собою об'єм газу, адсорбованого при стандартній температурі та тиск (STP) [273,15 K і атмосферний тиск (1,013×10⁵ 10 Па)], в мл.

40 Довідковий приклад 9: Визначення активності пропіленоксиду та швидкості падіння тиску (дослідження PO)

Під час дослідження PO, процедури попереднього випробування для оцінки можливої придатності формованих виробів як каталізатора для епоксидування пропену, при цьому формовані вироби випробовували в скляному автоклаві шляхом реакції пропену з водним розчином перекису водню (30 масових %) з отриманням пропіленоксиду. Зокрема, у скляний автоклав, який охолоджували до -25 °C, вносили 0,5 г формованого виробу разом із 45 мл метанолу. 20 мл рідкого пропену пресували в скляний автоклав і скляний автоклав нагрівали до 0 °C. При цій температурі в скляний автоклав вносили 18 г водного розчину перекису водню (30 масового % у воді). Після 5 годин реакції при 0 °C суміш нагрівали до кімнатної температури і рідку фазу аналізували за допомогою газової хроматографії щодо вмісту пропіленоксиду. Вміст пропіленоксиду в рідкій фазі (у масових %) є результатом тесту PO, тобто активність пропіленоксиду у формованому виробі. Швидкість падіння тиску була визначена після прогресування тиску під час тесту PO, описаного вище. Нарощування тиску реєстрували за допомогою передавача S-11 (від Wika Alexander Wiegand SE & Co. KG), який був розміщений у напірній лінії автоклава, та графічного плоттера Buddeberg 6100A. Відповідно отримані дані 55 були зчитувані та зображені на кривій нарощування тиску.

Швидкість падіння тиску (PDR) визначали за таким рівнянням:

$$PDR = [p(\max) - p(\min)] / \Delta t, \text{ з}$$

$$PDR / (\text{бар/хв.}) = \text{швидкість падіння тиску}$$

$$p(\max) / \text{бар} = \text{максимальний тиск на початку реакції}$$

$$60 \quad p(\min) / \text{бар} = \text{мінімальний тиск, який спостерігається під час реакції}$$

$\Delta t/\chi_v$ = різниця в часі від початку реакції до моменту часу, де спостерігався $p(\min)$

Довідковий приклад 10: Визначення каталітичних характеристик епоксидування пропілену

На реакційній установці безперервного епоксидування у вертикально розташований трубчастий реактор (довжина: 1,4 м, зовнішній діаметр 10 мм, внутрішній діаметр: 7 мм), оснащений кожухом для термостатизації, завантажували 15 г формованих виробів у вигляді пасмоїв, як описано у відповідних прикладах нижче. Об'єм реактора, що залишився, заповнювали інертним матеріалом (стеатитові сфери, діаметром 2 мм) на висоту приблизно 5 см у нижньому кінці реактора, а решту заповнювали у верхньому кінці реактора. Через реактор пропускали вихідні речовини з такими витратами: метанол (49 г/год.); перекис водню (9 г/год.; використовується у вигляді водного розчину перекису водню з вмістом перекису водню 40 масових %); пропілен (7 г/год.; марка полімера). Через охолоджуюче середовище, пропущене через кожух охолодження, температуру реакційної суміші регулювали так, щоб конверсія перекису водню, визначена на основі реакційної суміші, що виходить з реактора, була по суті постійною на рівні 90 %. Тиск у реакторі підтримувався постійним на рівні 20 бар (абс.), і реакційна суміш, крім каталізатора з нерухомим шаром, складалася з однієї рідкої фази. Вихідний з реактора потік за клапаном регулювання тиску був зібраний, зважений та проаналізований. Органічні компоненти аналізували на двох окремих газових хроматографах. Вміст перекису водню визначали колориметрично методом титанілсульфату. Селективність щодо поданого пропіленоксиду визначали відносно пропену та перекису водню і розраховували як 100-кратне відношення молей пропіленоксиду у вихідному потоці, поділене на молі пропену або перекису водню в сировині.

Довідковий приклад 11: Визначення параметра звивистості відносно води

Параметр звивистості визначали, як описується в експериментальному розділі US 20070099299 A1. Зокрема, ЯМР-аналіз для цього проводили при 25 °C та 1 барі при резонансній частоті 125 МГц за допомогою спектрометра ЯМР FEGRIS NT (cf. Stallmach et al. in Annual Reports on NMR Spectroscopy 2007, Vol. 61, pp. 51-131). Імпульсна програма, що використовувалась для аналізу самодифузії PFG ЯМР, являла собою стимульоване спінове ехо з градієнтами імпульсного поля відповідно до фігури 1b US 20070099299 A1. Для кожного зразка виміряли криві ослаблення спінового ехосигналу у різний час дифузії (від 7 до 100 мс) шляхом ступінчастого збільшення інтенсивності градієнтів поля (до максимального $g_{\max}=10$ Т/м). З кривих ослаблення спінового ехо-сигналу визначали залежність від часу коефіцієнта самодифузії порової води за допомогою рівнянь (5) і (6) US 20070099299 A1. Розрахунок звивистості: Рівняння (7) US 20070099299 A1 було використано для розрахунку залежності від

часу середнього квадратичного зсуву $\langle z^2(\Delta) \rangle = \frac{1}{3} \langle r^2(\Delta) \rangle$ від визначених таким чином коефіцієнтів

самодифузії $D(\Delta)$. Для прикладу, на фігурі 2 US 20070099299 A1 дані для зразкових носіїв каталізатора зазначеного документа наведені у подвійній логарифмічній формі разом з відповідними результатами для вільної води. На фігурі 2 US 20070099299 A1 також у кожному

випадку показано пряму лінію, яка найкраще підходить від лінійної підгонки $\langle r^2(\Delta) \rangle$, як функцію часу дифузії Δ . Відповідно до рівняння (7) US 2007/0099299 A1, його нахил точно відповідає

значенню $\overline{6D}$, де $\overline{D}$ відповідає коефіцієнту самодифузії, усередненому за інтервал часу дифузії. Відповідно до рівняння (3) US 20070099299 A1, звивистість потім отримують із співвідношення середнього коефіцієнта самодифузії вільного розчинника (D_0), визначеного таким чином, до відповідного значення середнього коефіцієнта самодифузії в формованому виробі.)

Довідковий приклад 12: Визначення пластичності

Пластичність, згадана в контексті представленого винаходу, слід розуміти як визначення за допомогою настільної випробувальної машини Z010/TN2S, supplier Zwick, D-89079 Ulm, Germany. Щодо основ даної машини та її роботи, дивіться відповідний посібник з інструкцій "Betriebsanleitung der Material-Prüfmaschine", version 1.1, by Zwick Technische Dokumentation, August-Nagel-Strasse 11, D-89079 Ulm, Germany (1999). Випробувальна машина Z010 була обладнана нерухомим горизонтальним столом, на якому була розміщена сталева випробувальна посудина, що містить циліндричний відсік з внутрішнім діаметром 26 мм і внутрішньою висотою 75 мм. Згадану посудину заповнювали композицією, яка підлягала вимірюванню, щоб маса, заповнена в посудину, не містила повітряних включень. Рівень заповнення був на 10 мм нижче верхнього краю циліндричного відсіку. У центрі над циліндричним відсіком посудини, що містить композицію, що підлягає вимірюванню, був плунжер із сферичним нижнім кінцем, в якому діаметр сфери становив 22,8 мм, і який вільно переміщався у вертикальному напрямку. Зазначений плунжер був встановлений на

тензодатчику випробувальної машини з максимальним випробувальним навантаженням 10 кН. Під час вимірювання плунжер переміщали вертикально вниз, таким чином занурюючи в композицію в посудині для випробування. В умовах випробування плунжер переміщувався з попереднім зусиллям (Vorkraft) 1,0 Н, швидкістю попереднього зусилля (Vorkraftgeschwindigkeit) 100 мм/хв і наступною швидкістю випробування (Prüfgeschwindigkeit) 14 мм/хв. Вимірювання припиняється, коли вимірювана сила досягає значення менше ніж 70 % від попереднього вимірюваної максимальної сили даного вимірювання. Експеримент контролювався за допомогою комп'ютера, який реєстрував та оцінював результати вимірювань. Вимірювана максимальна сила (F_{max} в Н) відповідає пластичності, про яку йдеться в контексті представленого винаходу.

Приклад 1: Забезпечення частинок цеолітного матеріалу, що має каркасний тип MFI

Порошок силікаліту титану-1 (TC-1) готували за такою рецептурою: TEOS (тетраетилортосилікат) (300 кг) завантажували в реактор з перемішуванням при кімнатній температурі та починали перемішування (100 об/хв). У другій посудині спочатку змішували 60 кг TEOS і 13,5 кг TEOT (тетраетилортотитанат), а потім додавали до TEOS в першій посудині. Згодом до суміші в першій посудині додали ще 360 кг TEOS. Потім вміст першої посудини перемішували протягом 10 хвилин перед додаванням 950 г ТРАОН (тетрапропіламонію гідроксиду). Перемішування продовжували протягом 60 хвилин. Етанол, що виділяється під час гідролізу, відокремлювали перегонкою при температурі на дні 95 °С. Потім до вмісту першої посудини додавали 300 кг води, а далі додавали воду в кількості, еквівалентній кількості дистилату. Отриману суміш перемішували протягом 1 години. Кристалізацію проводили при 175 °С протягом 12 годин при автогенному тиску. Отримані кристали силікаліту титану-1 відокремлювали, висушували та прожарювали при температурі 500 °С на повітрі протягом 6 годин. Отримані частинки цеолітного матеріалу мали вміст Ti 1,9 масових %, розрахований на елементний Ti.

Приклад 2: Підготовка формованого виробу з використанням попередника зв'язуючої речовини на основі колоїдного діоксиду кремнію з розподілом частинок за розміром згідно з винаходом

Формування: Частинки цеолітного матеріалу з прикладу 1 (105,3 г) та карбоксиметилцелюлози (4,0 г; Walocel™), Mw=15000 г) змішували в місильній машині протягом 5 хвилин. Потім безперервно додавали водну дисперсію полістиролу (100,7 г; 33,7 г полістиролу). Через 10 хвилин додавали поліетиленоксид (1,33 г). Через 10 хвилин додавали водний попередник колоїдного кремнезему (70 г; 50 мас. % SiO₂; Dv10=51 нм; Dv50=72 нм; Dv90=111; від Nalco Chemical Co.). Ще через 10 хвилин додали 10 мл води, а ще через 5 хвилин додали 10 мл води. Загальний час 5 замішування склав 40 хв. Отриману формуючу масу, отриману в результаті замішування, з пластичністю 1283 Н, екструдували під тиском 130 бар через матрицю з круглими отворами діаметром 1,9 мм. Отримані пасма висушували на повітрі в сушильній шафі при температурі 120 °С протягом 4 годин і прожарювали на повітрі при температурі 490 °С протягом 5 годин. Міцність пасм на роздавлення, визначена, як описується вище, становила 1,4 Н.

Обробка водою: 36 г згаданих пасм змішували в чотирьох порціях по 9 г з 180 г деіонізованої води на порцію. Отримані суміші нагрівали до температури 145 °С протягом 8 годин в автоклаві. Після цього отримані оброблені водою пасма відокремлювали та просівали через сито 0,8 мм. Отримані пасма потім промивали деіонізованою водою і піддавали впливу потоку азоту при температурі навколишнього середовища. Відповідно промиті пасма потім висушували на повітрі при температурі 120 °С протягом 4 годин, а потім прожарювали на повітрі при температурі 450 °С протягом 2 годин.

Отриманий матеріал мав ТОС менше ніж 0,1 г/100 г, вміст Si 44 г/100 г і вміст Ti 1,4 г/100 г. Міцність пасм на роздавлення, визначена, як описується вище, становила 8 Н, а загальний об'єм пор, визначений, як описується вище, становив 0,83 мл/г. Параметр звивистості відносно води становив 1,60. Питома площа поверхні BET становила 356 м²/г, значення С становило - 356.

Приклад 3: Отримання формованого виробу з використанням попередника зв'язувальної речовини на основі колоїдного діоксиду кремнію з розподілом розмірів частинок згідно винаходу

Формування: Частинки цеолітного матеріалу з прикладу 1 (105,3 г) і карбоксиметилцелюлози (4,0 г; Walocel™), Mw=15 000 г) змішували в місильній машині протягом 5 хвилин. Потім безперервно додавали водну дисперсію полістиролу (100,7 г; 33,7 г полістиролу). Через 10 хвилин додавали поліетиленоксид (1,33 г). Через 10 хвилин додавали водний колоїдний попередник зв'язувальної речовини на основі діоксиду кремнію (70 г; 40 мас. % SiO₂; Dv10=68 нм; Dv50=97 нм; Dv90=151 нм; від Nalco Chemical Co.). Ще через 10 хвилин додали 20 мл води. Загальний час замішування склав 35 хвилин. Отриману формуючу

масу, яка одержана в результаті змішування, екструдували під тиском 150 бар через матрицю, що має круглі отвори діаметром 1,9 мм. Отримані пасма висушували на повітрі в сушильній шафі при температурі 120 °C протягом 4 годин і прожарювали на повітрі при температурі 490 °C протягом 5 годин. Міцність пасм на роздавлювання, визначена, як описується вище, становила 1,0 Н.

Обробка водою: 36 г зазначених пасм змішували в чотирьох порціях по 9 г з 180 г деіонізованої води на порцію. Отримані суміші нагрівали до температури 145 °C протягом 8 годин в автоклаві. Після цього отримані оброблені водою пасма відокремлювали та просівали через сито 0,8 мм. Отримані пасма потім промивали деіонізованою водою і піддавали впливу потоку азоту при температурі навколишнього середовища. Відповідно промиті пасма потім висушували на повітрі при температурі 120 °C протягом 4 годин, а потім прожарювали на повітрі при температурі 450 °C протягом 2 годин.

Отриманий матеріал мав ТОС менше ніж 0,1 г/100 г, вміст Si 44 г/100 г і вміст Ti 1,4 г/100 г. Міцність пасм на роздавлювання, визначена, як описується вище, становила 11 Н, а загальний об'єм пор, визначений, як описується вище, становив 0,84 мл/г. Параметр звивистості відносно води становив 1,71. Питома площа поверхні за БЕТ становила 352 м²/г, значення С становило - 500.

Приклад 4: Отримання формованого виробу з використанням попередника колоїдного діоксиду кремнію з розподілом розмірів частинок згідно винаходу

Формування: Частинки цеолітного матеріалу з прикладу 1 (105,3 г) і карбоксиметилцелюлози (4,0 г; Walocel™), Mw=15 000 г) змішували в місильній машині протягом 5 хвилин. Потім безперервно додавали водну дисперсію полістиролу (100,7 г; 33,7 г полістиролу). Через 10 хвилин додавали поліетиленоксид (1,33 г). Через 10 хвилин додавали водний колоїдний попередник зв'язуючої речовини на основі діоксиду кремнію (70 г; 50 масових % SiO₂; Dv10=56; Dv50=81 нм; Dv90=129 нм; від Nalco Chemical Co.). Ще через 10 хвилин додали 20 мл води. Загальний час 30 змішування склав хвилин. Отриману формуючу масу, отриману в результаті змішування, екструдували під тиском 150 бар через матрицю, що має круглі отвори діаметром 1,9 мм. Отримані пасма висушували на повітрі в сушильній шафі при температурі 120 °C протягом 4 годин і прожарювали на повітрі при температурі 490 °C протягом 5 годин. Міцність пасм на роздавлювання, визначена, як описується вище, становила 1,5 Н.

Обробка водою: 36 г даних пасм змішували в чотирьох порціях по 9 г з 180 г деіонізованої води на порцію. Отримані суміші нагрівали до температури 145 °C протягом 8 годин в автоклаві. Після цього отримані оброблені водою пасма відокремлювали та просівали через сито 0,8 мм. Отримані пасма потім промивали деіонізованою водою і піддавали впливу потоку азоту при температурі навколишнього середовища. Відповідно промиті пасма потім висушували на повітрі при температурі 120 °C протягом 4 годин, а потім прожарювали на повітрі при температурі 450 °C протягом 2 годин.

Отриманий матеріал мав ТОС менше ніж 0,1 г/100 г, вміст Si 44 г/100 г і вміст Ti 1,4 г/100 г. Міцність пасм на роздавлювання, визначена, як описується вище, становила 12 Н, а загальний об'єм пор, визначений, як описується вище, становив 0,82 мл/г. Параметр звивистості відносно води становив 1,67. Питома площа поверхні за БЕТ становила 353 м²/г, значення С становило - 395.

Порівняльний приклад 1: Підготовка формованого виробу з використанням попередника колоїдного діоксиду кремнію зв'язувальної речовини з розподілом частинок за розміром, не відповідаючим винаходу

Формування: Частинки цеолітного матеріалу з прикладу 1 (105,3 г) і карбоксиметилцелюлози (4,0 г; Walocel™), Mw=15 000 г) змішували в місильній машині протягом 5 хвилин. Потім безперервно додавали водну дисперсію полістиролу (100,7 г; 33,7 г полістиролу). Через 10 хвилин додавали поліетиленоксид (1,33 г). Через 10 хвилин додавали водний попередник колоїдного кремнезему (70 г; 40 масових % SiO₂; Dv10=28 нм; Dv50=37 нм; Dv90=52 нм; Ludox® AS-40). Ще через 10 хвилин додали 20 мл води. Загальний час змішування склав 35 хвилин. Отриману формуючу масу, отриману в результаті змішування, з пластичністю 3321 Н, екструдували під тиском 100 бар через матрицю, що має круглі отвори діаметром 1,9 мм. Отримані пасма сушили на повітрі в сушильній шафі при температурі 120 °C протягом 4 годин і прожарювали на повітрі при температурі 490 °C протягом 5 годин. Міцність пасм на роздавлювання, визначена, як описується вище, становила 1,6 Н.

Обробка водою: 36 г даних пасм змішували в чотирьох порціях по 9 г з 180 г деіонізованої води на порцію. Отримані суміші нагрівали до температури 145 °C протягом 8 годин в автоклаві. Після цього отримані оброблені водою пасма відокремлювали та просівали через сито 0,8 мм. Отримані пасма потім промивали деіонізованою водою і піддавали впливу потоку азоту при

температурі навколишнього середовища. Відповідно промиті пасма потім висушували на повітрі при температурі 120 °C протягом 4 годин, а потім прожарювали на повітрі при температурі 450 °C протягом 2 годин.

Отриманий матеріал мав ТОС менше ніж 0,1 г/100 г, вміст Si 44 г/100 г і вміст Ti 1,5 г/100 г.
 5 Міцність пасма на роздавлювання, визначена, як описується вище, становила 5 Н, а загальний об'єм пор, визначений, як описується вище, становив 0,89 мл/г. Параметр звивистості відносно води становив 1,73. Питома площа поверхні за БЕТ становила 389 м²/г, значення С становило - 547.

Узагальнення значень міцності на роздавлювання

10 У наступній таблиці 1 узагальнено значення міцності на роздавлювання формованих виробів, які були отримані вище. Очевидно, що формований виріб, за представленим винаходом, демонструють значно вищі і, отже, дуже вигідні значення. Більше того, як можна вивести з таблиці, покращення значень міцності на роздавлювання, досягнутого шляхом обробки водою відповідно до етапу (v) способу згідно представленого винаходу, є значно
 15 кращим, ніж відповідне покращення щодо способу попереднього рівня техніки.

Таблиця 1

Результати каталітичного дослідження відповідно до довідкового прикладу 9

Формований виріб відповідно до #	міцність на роздавлювання/Н (без оброблення водою)	міцність на роздавлювання/Н (оброблення водою)	покращення/(100 %) *)
Приклад 2	1,4	8	+4,7
Приклад 3	1,0	11	+10,0
Приклад 4	1,5	12	+7,0
Порівняльний приклад 1	1,6	5	+2,1

*) підвищення міцності на роздавлювання від формованого виробу без обробки водою до формованого виробу, обробленого водою

Приклад 5: Дослідження формованих виробів як каталізаторів епоксидування пропену

Приклад 5.1: Попереднє дослідження - дослідження РО

20 Формовані вироби з прикладів були попередньо досліджені щодо їх загальної придатності як каталізаторів епоксидування згідно з дослідженням РО, як описується в довідковому прикладі 9. Відповідні отримані в результаті значення активності пропіленоксиду наведені в таблиці 2 нижче.

Таблиця 2

Результати каталітичного дослідження згідно з довідковим прикладом 9

Формований виріб відповідно до #	Активність пропіленоксиду/%	Швидкість падіння тиску/(бар/хв.)
Приклад 2	5,0	0,013
Приклад 3	4,8	0,008
Приклад 4	4,7	0,011
Порівняльний приклад 1	4,7	0,021

25 Очевидно, що формовані вироби, згідно з представленим винаходом, виявляють дуже гарну активність пропіленоксиду за даними дослідження РО, та є перспективними кандидатами на роль каталізаторів у промислових реакціях безперервного епоксидування.

Приклад 5.2: Каталітичні характеристики формованих виробів у безперервній реакції епоксидування

30 Характеристики формованих виробів відповідно до представленого винаходу порівнювали з формованими виробами попереднього рівня техніки в безперервній реакції епоксидування, як описується в довідковому прикладі 10. Після значної тривалості реакції (TOS) конверсію/перетворення пероксиду водню формованих виробів у відповідності з прикладом 3 і 4

порівнювали з відповідними формованими виробами, відповідно до рівня техніки (Порівняльні приклади 1). Були отримані наступні результати відповідно до таблиці 3:

Таблиця 3

Результати каталітичного випробування згідно з довідковим прикладом 10

Формований виріб відповідно до	TOS/год.	T (охладжуюче середовище)/C	конверсія/перетворення перекису водню/%
Приклад 3	500	54	95±2
Приклад 4	385	55	90±2
Порівняльний приклад 1	500	56	91±2

5 Джерела інформації:

- US 2016/250624 A1
- US 6551546 B1
- DE 19859561 A1
- US 7825204 B2 10

10

ФОРМУЛА ВІНАХОДУ

1. Хімічний формований виріб, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I і який має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O і Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначеного цеолітного матеріалу, де зв'язуюча речовина містить Si та O, при цьому формований виріб має загальний об'єм пор від 0,4 до 1,5 мл/г, міцність на роздавлювання від 8 до 15 Н та питому площу поверхні за БЕТ в діапазоні від 320 до 375 м²/г.
2. Формований виріб за п. 1, в якому від 95 до 100 мас. % цеолітного матеріалу, що міститься у формованому виробі, складається з Si, O, Ti та, необов'язково, H, і де цеолітний матеріал містить Ti в кількості в діапазоні від 0,2 до 5 мас. %, у розрахунку на елементарний Ti та на основі загальної маси цеолітного матеріалу.
3. Формований виріб за п. 1 або 2, в якому від 95 до 100 мас. % зв'язуючої речовини, що міститься у формованому виробі, складається з Si та O, і де формований виріб містить зв'язуючу речовину, розраховану як SiO₂, у кількості в діапазоні від 2 до 90 мас. %, виходячи з загальної маси формованого виробу.
4. Формований виріб за будь-яким одним із пп. 1-3, в якому від 95 до 100 мас. % формованого виробу складається з цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини.
5. Формований виріб за будь-яким одним із пп. 1-4, що має загальний об'єм пор у діапазоні від 0,4 до 1,2 мл/г.
6. Формований виріб за будь-яким одним із пп. 1-5, що демонструє одну або більше з наступних характеристик:
 - параметр звивистості відносно води в діапазоні від 1,0 до 2,5;
 - кристалічність у діапазоні від 50 до 100 %;
 - швидкість падіння тиску в діапазоні від 0,005 до 0,019 бар(абс)/хв.
7. Спосіб отримання хімічного формованого виробу за будь-яким одним із пп. 1-6, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, і який має каркасний тип MFI та каркасну структуру, яка містить Si, O та Ti, де формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину для зазначеного цеолітного матеріалу, причому зв'язуюча речовина містить Si та O, причому спосіб включає:
 - (i) забезпечення цеолітного матеріалу, що демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, що має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti;
 - (ii) забезпечення попередника зв'язуючої речовини, що містить колоїдну дисперсію діоксиду кремнію у воді, де зазначений попередник зв'язуючої речовини має розподіл розмірів частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv10 щонайменше 35 нанометрів, значенням Dv50 - щонайменше 45 нанометрів, і значенням Dv90 - щонайменше 65 нанометрів;
 - (iii) приготування суміші, що містить цеолітний матеріал, забезпечений на етапі (i), і попередник зв'язуючої речовини, забезпечений на етапі (ii);
 - (iv) формування суміші, отриманої відповідно до етапу (iii), отримання попередника формованого виробу;

(v) приготування суміші, що містить попередник формованого виробу, отриманий відповідно до етапу (iv), і води, і піддавання суміші обробки водою в гідротермічних умовах з одержанням обробленого водою попередника формованого виробу;

(vi) прожарювання обробленого водою попередника формованого виробу в газовій атмосфері з отриманням формованого виробу;

причому обробка води відповідно до етапу (v) включає температуру суміші в діапазоні від 100 до 200 °C, та

причому прожарювання згідно з етапом (vi) проводять при температурі газової атмосфери в діапазоні від 400 до 490 °C.

8. Спосіб за п. 7, який **відрізняється** тим, що розподіл розмірів частинок на основі об'єму колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді відповідно до етапу (ii) характеризується значенням Dv_{10} в діапазоні від 35 до 80 нанометрів, значенням Dv_{50} - в діапазоні від 45 до 125 нанометрів, і значенням Dv_{90} - в діапазоні від 65 до 200 нанометрів.

9. Спосіб за п. 7 або 8, який **відрізняється** тим, що в суміші, приготуваній відповідно до етапу (iii) і підданій етапу (iv), масове співвідношення цеолітного матеріалу і суми цеолітного матеріалу та зв'язуючої речовини, обчислене як SiO_2 , знаходиться в діапазоні від 2 до 90 %.

10. Спосіб за п. 9, який **відрізняється** тим, що в суміші, отриманій відповідно до етапу (iii) і підданій етапу (iv)

масове співвідношення цеолітного матеріалу і однієї або більше добавок знаходиться в діапазоні від 0,3:1 до 1:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу і похідної целюлози знаходиться в діапазоні від 10:1 до 53:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу і поліетиленоксиду знаходиться в діапазоні від 70:1 до 110:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу і полістиролу знаходиться в діапазоні від 2:1 до 8:1;

масове співвідношення цеолітного матеріалу і води знаходиться в діапазоні від 0,7:1 до 0,85:1.

11. Спосіб за будь-яким одним із пп. 7-10, який **відрізняється** тим, що формування відповідно до етапу (iv) додатково включає висушування попередника формованого виробу в газовій атмосфері, і де формування відповідно до етапу (iv) додатково включає прожарювання висушеного попередника формованого виробу в газовій атмосфері.

12. Спосіб за будь-яким одним із пп. 7-11, який **відрізняється** тим, що в суміші, приготуваній відповідно до етапу (v), масове співвідношення попередника формованого виробу і води знаходиться в діапазоні від 1:1 до 1:30.

13. Спосіб за будь-яким одним із пп. 7-12, який **відрізняється** тим, що обробка водою відповідно до етапу (v) включає температуру суміші в діапазоні від 125 до 175 °C, де обробка води відповідно до етапу (v) здійснюється під аутогенним тиском.

14. Спосіб за будь-яким одним із пп. 7-13, який **відрізняється** тим, що етап (v) додатково включає відокремлення обробленого водою попередника формованого виробу від суміші, отриманої в результаті обробки водою.

15. Спосіб за будь-яким одним із пп. 7-14, який **відрізняється** тим, що прожарювання відповідно до етапу (vi) проводять при температурі газової атмосфери в діапазоні від 420 до 470 °C.

16. Застосування формованого виробу за будь-яким одним із пп. 1-6 як каталізатора або компонента каталізатора.

17. Застосування колоїдної дисперсії діоксиду кремнію у воді як попередника зв'язуючої речовини для приготування хімічного формованого виробу за будь-яким одним із пп. 1-6, причому колоїдна дисперсія містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I і який має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, при цьому формований виріб додатково містить зв'язуючу речовину, отриману із зазначеного попередника зв'язуючої речовини, причому зазначений діоксид кремнію має розподіл розмірів частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv_{10} щонайменше 35 нанометрів, а значення Dv_{50} - щонайменше 45 нанометрів, і значення Dv_{90} - щонайменше 65 нанометрів.

18. Застосування суміші, що містить цеолітний матеріал, який демонструє ізотерму адсорбції/десорбції азоту типу I, і яка має каркасний тип MFI та каркасну структуру, що містить Si, O та Ti, причому суміш додатково містить колоїдну дисперсію діоксиду кремнію у воді, зазначений попередник зв'язуючої речовини має розподіл розмірів частинок на основі об'єму, що характеризується значенням Dv_{10} щонайменше 35 нанометрів, значенням Dv_{50} -

щонайменше 45 нанометрів, і значенням Dv90 - щонайменше 65 нанометрів, для приготування хімічного формованого виробу за будь-яким одним із пп. 1-6.