



REPÚBLICA FEDERATIVA DO BRASIL  
MINISTÉRIO DA ECONOMIA  
INSTITUTO NACIONAL DA PROPRIEDADE INDUSTRIAL

CARTA PATENTE Nº BR 102014028798-1

O INSTITUTO NACIONAL DA PROPRIEDADE INDUSTRIAL concede a presente PATENTE DE INVENÇÃO, que outorga ao seu titular a propriedade da invenção caracterizada neste título, em todo o território nacional, garantindo os direitos dela decorrentes, previstos na legislação em vigor.

**(21) Número do Depósito:** BR 102014028798-1

**(22) Data do Depósito:** 14/10/2014

**(43) Data da Publicação Nacional:** 24/05/2016

**(51) Classificação Internacional:** C01B 39/02; B01J 29/70.

**(54) Título:** SÍNTESE DA ZEÓLITA ZSM-22 COM TEMPO DE CRISTALIZAÇÃO REDUZIDO E SEM UTILIZAÇÃO DE DIRECIONADORES ORGÂNICOS DE ESTRUTURAS

**(73) Titular:** UNIVERSIDADE FEDERAL DE ALAGOAS. CGC/CPF: 24464109000148. Endereço: AV LOURIVAL MELO MOTA, S/N CAMPUS A.C. SIMÕES, MACEIÓ, AL, BRASIL(BR), 57072 900

**(72) Inventor:** ANTONIO OSIMAR SOUSA DA SILVA; LENIVALDO VALÉRIO DE SOUSA JÚNIOR; SORAYA LIRA ALENCAR; BRUNO JOSÉ BARROS DA SILVA.

**Prazo de Validade:** 20 (vinte) anos contados a partir de 14/10/2014, observadas as condições legais

**Expedida em:** 27/04/2021

Assinado digitalmente por:

**Liane Elizabeth Caldeira Lage**

Diretora de Patentes, Programas de Computador e Topografias de Circuitos Integrados

REPUBLICA FEDERATIVA DO BRASIL  
15 de Novembro de 1889

Relatório descritivo para patente de invenção: **SÍNTESE DA ZEÓLITA ZSM-22 COM TEMPO DE CRISTALIZAÇÃO REDUZIDO E SEM UTILIZAÇÃO DE DIRECIONADORES ORGÂNICOS DE ESTRUTURAS**

**Campo da Invenção**

[001] A presente invenção relata um processo de obtenção da zeólita ZSM-22 pura, com alto teor de silício, isenta de direcionadores orgânicos, e em curtos tempos de cristalização (tempos inferiores à 6 horas) em sistemas estáticos e dinâmicos. O processo compreende a preparação de uma mistura reacional composta de uma fonte de alumínio, silicato de sódio como fonte de silício e de cátion alcalino, uma pequena quantidade de sementes de cristalização (cristais de ZSM-22), água e metanol como solventes. Os processos de preparação de zeólicas são descritos em diversos documentos, tendo cada uma sua particularidade. No caso da ZSM-22, o alto tempo de cristalização, relatado nos exemplos das patentes existentes (superiores à 20 horas), o uso de direcionadores orgânicos (geralmente diaminas), que são onerosos, e a necessidade de sistemas com forte agitação (em torno de 400 rpm), são as principais dificuldades encontradas nos processos de síntese descritos no estado da arte. Portanto, a presente invenção relata o processo de síntese de um aluminosilicato cristalino poroso designado ZSM-22, que pode ser usado como peneira molecular, suporte e catalisador em reações para conversão de compostos orgânicos, localizando o setor técnico deste documento dentro da mineralogia e crescimento de cristais, bem como da síntese de compostos inorgânicos.

**Antecedentes da Invenção e Técnica Anterior**

[002] A ZSM-22 foi sintetizada pela primeira vez em 1982, sendo uma zeólita rica em silício e de estrutura topológica TON, apresentando um sistema de

canais unidimensionais menores do que aqueles encontrados nas zeólitas ZSM-5, ZSM-11 e ZSM-35. A abertura dos canais (diâmetro livre) é de 0,45 x 0,55 nm, sem intersecções entre os canais. (KOKOTAILO, G. T.; SCHLENKER, J.L., DWYER, F. G.; VALYOCSIK, E. W. The framework topology of ZSM-22: A high silica zeólita. *Zeolites*, Amsterdam, v. 5, n. 6, p. 349, nov. 1985; BORADE, R. B., ADNOT, A.; KALIAGUE, S. Acid sites in Al-ZSM-22 and Fe-ZSM-22. *Zeolites*, Amsterdam, v. 11, n. 710, p. 1-10, set./out. 1991). O tipo de estrutura TON inclui os materiais ZSM-22, Theta-1, Nu-10, KZ-2 e ISI-1 (ERNST, S.; WEITKAMP, J.; MARTENS, J. A.; JACOBS, P. A. *Zeolites: catalysts for the synthesis of organic compounds. Applied Catalysis*, Amsterdam, vol. 48, n. 1, p. 137-148, mar. 1989.) e tem propriedades ácidas e seletividade que são particularmente desejáveis na indústria do petróleo. Aplicações estudadas incluem: a isomerização de xilenos (MOBIL. Mobil Oil Corporation (New York). David Harold Olson; Robert Bruce Calvert; Ernest William Valyocsik. A process for isomerizing xylenes. EP n. 0102716, 13 jul. 1983, 14 mar. 1984.), a metilação de tolueno com metanol a p-xileno, alquilação de hidrocarbonetos aromáticos (HOGAN, P.J.; WHITTAM, T.V.; BIRTILL, J. J. STEWART, A. Synthesis properties and catalytic behaviour of zeolite Nu-10. *Zeolites*, Amsterdam, v. 4, n. 3, p. 275, jul. 1984.) e isomerização de 1-buteno (MARK, W.; SIMON, S. L.; CHI, L. *Synthesis and Characterization of ZSM-22 Zeolites and Their Catalytic Behavior in 1-Butene Isomerization Reactions. Journal of Catalysis*, Amsterdam, v. 147, n. 2, p. 484, jun. 1994.).

[003] Embora a ZSM-22 apresente um desempenho eficiente nestas reações específicas, o desafio reside na produção do material devido ao uso de agentes direcionadores de estruturas (SDA's), comumente chamado de direcionadores orgânicos, necessidade de agitação vigorosa (400 rpm) e longos tempos de cristalização (superiores a 20 horas). Inúmeros documentos relatam seu

processo de síntese, em geral, a composição da mistura reacional consiste de uma fonte de silício, uma fonte de alumínio, uma fonte de cátions alcalinos ou alcalinos terrosos, um direcionador orgânico e água, no entanto, os direcionadores orgânicos são muito caros e tóxicos, além de gerarem efluentes líquidos e gasosos, também tóxicos, durante as etapas de separação dos sólidos (CASCI, J. L. Zeolite molecular sieves: preparation and scale-up.

**Microporous and Mesoporous Materials**, Amsterdam, v. 82, n. 3, p. 217-226, agost. 2005; VORTMANN, S.; MARLER, B.; GIES, H.; DANIELS, P.

The synthesis and crystal structure of the new borosilicate zeolite RUB-13.

**Microporous and Mesoporous Materials**. Amsterdam, vol. 4, n. 2-3, p. 11-121, jun. 1995). E em relação ao tempo de cristalização, quanto menor, maior será a produção diária, maior número de bateladas dia.

[004] As patentes US 4.902.406 e US 4.481.177 apresentam métodos de síntese utilizando direcionadores orgânicos, agitação vigorosa, temperaturas que variam de 80°C à 210°C e tempos de cristalização mínimo de 24 horas, segundo exemplos demonstrados. Na patente EP 065.400 foi cristalizada a zeólita denominada Nu-10 em presença do direcionador tetraetileno de pentamina. Indica também que são preferíveis reações agitadas, visto que um processo de agitação inadequado aumenta a possibilidade de contaminações pela zeólita ZSM-5 ou cristobalita. A patente US 5.783.168 descreve a produção da ZSM-22 em um sistema que pode ser livre ou com baixa agitação, mas ainda na presença do direcionador 1,6-diaminohexano. Cristais da zeólita (sementes) foram adicionados à mistura reacional em pequenas quantidades, cerca de 1000 ppm.

[005] Os exemplos apresentados na patente US 4.533.649 foram feitos com a utilização de soluções aquosas de amônia no lugar do direcionador orgânico, reagentes caros (como solução de amônia, sílica coloidal e gel), agitação

vigorosa e tempos de cristalização mínimos de 48 horas. O documento EP 087.017 descreve a produção do material denominado ISI-1 utilizando metanol em substituição ao direcionador orgânico. Segundo Sugimoto et al. (1986) a ação do metanol na cristalização é de solvente, juntamente com a água (SUGIMOTO, M.; TAKATSU, K.; KAWATA, N.; KONISHI, T. **Studies in Surface Science and Catalysis**, v. 28, p. 193-200, 1986.). No exemplo desse último documento de patente foram necessários para a formação do material: agitação, tempo de cristalização de 20 horas e temperatura de 170°C. Na patente US 5.063.038 foram utilizados alcoóis ou diol como codirecionadores para a síntese da ZSM-22 e ZSM-23 visando inibir a formação da ZSM-5. Não só a eliminação do uso dos direcionadores orgânicos, mas também o uso de reagentes baratos (fontes de silício, alumínio e cátions), juntamente com tempos reduzidos de cristalização, são primordiais para diminuir o custo da produção da ZSM-22. Os sistemas não agitados possibilitam a economia de energia elétrica, além do uso de equipamentos mais simples e de menor custo de aquisição e operação. O presente documento identificou um processo de melhoria na preparação da zeólita ZSM-22 com tempos de cristalização inferiores a 6 horas, sem uso de direcionadores orgânicos e com utilização de reagentes de baixo custo.

## Descrição das Figuras

[006] A Figura 1 apresenta o gráfico de Difração de Raios X – DRX (difratograma) do produto do exemplo 1, mostrando que após 6 horas de cristalização a ZSM-22 foi produzida sem contaminações de ZSM-5 ou cristobalita.

[007] A Figura 2 apresenta o gráfico de DRX da ZSM-22 obtido segundo o exemplo 2. Passadas 5 horas de cristalização, sem agitação, foi obtida a ZSM-22 pura e com melhor cristalinidade que o da Figura 1.

[008] A Figura 3 mostra o gráfico de DRX da ZSM-22 cristalizada com o tempo de 3 horas, referente ao exemplo 3. A mesma também se apresentou livre de contaminações e boa cristalinidade.

[009] A Figura 4 mostra o gráfico de DRX da ZSM-22 cristalizada com o tempo de 4 horas, referente ao exemplo 4.

[010] A Figura 5 mostra o gráfico de DRX da ZSM-22 cristalizada com o tempo de 3 horas, referente ao exemplo 5.

[011] A Figura 6 mostra o gráfico de DRX da zeólita ZSM-22 utilizada como semente de cristalização.

[012] A Figura 7 apresenta a imagem obtida por MEV da amostra sintetizada de acordo com o exemplo 4.

[013] A Figura 8 apresenta a imagem obtida por MEV da amostra sintetizada de acordo com o exemplo 5.

## **Sumário da Invenção**

[014] As zeólitas apresentam uma diversidade estrutural bastante ampla e tais características já são estudadas desde o início do século XX, com discussão e detalhamento de propriedades como a adsorção e características referentes à porosidade. Com base principalmente em conhecimentos como esses, surgiram as primeiras aplicações no setor de combustíveis. A presente invenção, objeto de pedido desta patente, refere-se ao processo de obtenção da zeólita ZSM-22, um composto inorgânico mineral formado a partir de silício e alumínio, com propriedades químicas e físicas de grande interesse em setores industriais influentes na macroeconomia mundial, tais como petróleo e seus derivados, podendo ser empregada como catalisador por possuir sítios ácidos, além de características estruturais peculiares que o tornam extremamente interessante nas reações de craqueamento primárias e/ou

secundárias. O processo descrito nesse documento resulta na obtenção do composto em tempo muito menor do que os que já foram descritos anteriormente e custos de produção consideravelmente reduzidos, tornando esse mecanismo economicamente atrativo para o setor industrial de interesse.

### **Descrição Detalhada da Invenção**

[015] Apresenta-se a invenção proposta conforme foi desenvolvida, em duas etapas: i) Síntese da zeólita ZSM-22; e ii) Crescimento dos cristais da referida zeólita.

#### **i) Síntese da zeólita**

[016] A presente invenção relata a melhoria no processo de síntese da zeólita ZSM-22 sem contaminações, livre de direcionadores orgânicos e com baixo tempo de cristalização. Foram utilizados os seguintes reagentes (Tabela 01) para síntese das amostras de ZSM-22:

Tabela 01 – Reagentes precursores das amostras.

<b>Fontes</b>	<b>Reagentes</b>
Silício e cátion alcalino	Silicato de sódio (11,2% Na <sub>2</sub> O, 31,5% SiO <sub>2</sub> , Pernambuco Química PQ1-40)
Alumínio	Sulfato de alumínio hidratado (> 99%, Merck)
Solvente	Água destilada e metanol (99,8%, Synth)
Sementes de cristalização	Zeólita ZSM-22 sintetizada de acordo com o exemplo 11 da patente US 4.902.406.
Ajuste de alcalinidade	Ácido sulfúrico (98%, J.T. Baker)

[017] A ZSM-22 com alto teor de sílica pode ser preparada em sistemas agitados e estáticos, com temperaturas entre 150 e 200°C, preferencialmente

170°C, com as seguintes composições molares de mistura reacional (Tabela 02) em termos de óxidos:

Tabela 02 – Parâmetros do gel de síntese.

<b>Parâmetros</b>	<b>Intervalo</b>	<b>Preferência</b>
$\text{CH}_3\text{OH}/\text{SiO}_2$	0,5 – 5,0	1,0 – 4,0
$\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$	20 - $\infty$	50 – 100
$\text{OH}/\text{SiO}_2$	0,1 – 0,3	0,2
$\text{H}_2\text{O}/\text{SiO}_2$	10 – 100	15 – 40
Sementes/Gel de Síntese*	0,003 – 0,03	0,006 – 0,01

\* Razão em massa.

[018] O procedimento para produção da mistura reacional segue a seguinte metodologia:

São preparadas cinco soluções, cada uma contendo 20% da água requerida para síntese;

- 1 Solução A: ácido sulfúrico e água;
- 2 Solução B: fonte de alumínio e água;
- 3 Solução C: silicato de sódio e água;
- 4 Solução D: álcool e água;
- 5 Solução E: sementes e água.

Com as soluções preparadas deve-se:

- i) Adicionar à solução A a solução B;
- ii) Adicionar à solução C a mistura AB;

- iii) Adicionar à solução D a mistura anterior;
- iv) Finalmente adicionar a solução de sementes.

[019] Após cada etapa de adição, as soluções foram agitadas (agitação mecânica) até ficarem homogêneas, cerca de 20 minutos a 400 rpm.

## ii) Crescimento dos cristais da zeólita

[020] O procedimento para o crescimento dos cristais da zeólita ZSM-22 ocorreu a partir de processo sob agitação (dinâmico) e sem agitação (estático) como é descrito na sequência.

[021] Para os casos onde a cristalização ocorreu sem agitação, a mistura resultante foi transferida para vasos de teflon com o volume de 70 mL, que foram inseridos em autoclaves de aço inoxidável e levados à estufa para cristalização. Ao atingir a temperatura desejada, inicia-se a contagem do tempo de cristalização preestabelecido. Decorrido o tempo de cristalização, a autoclave foi retirada da estufa e resfriada até temperatura ambiente. O seu conteúdo foi transferido para um béquer contendo 100 mL de água destilada e o sólido resultante do processo de cristalização foi separado do líquido sobrenadante por filtração a vácuo, lavado diversas vezes com água destilada (até o pH do filtrado atingir o valor ~ 7,0) e seco em estufa a 120 °C por 12 horas.

[022] No caso das cristalizações com agitação, a mistura resultante foi transferida para um vaso de teflon com volume de 700 mL. Este recipiente é colocado dentro do vaso de aço inoxidável (volume de 1L) de um reator Parr, modelo 4520, sob agitação constante de 400 rpm. Após a cristalização, a fase sólida obtida foi recuperada através de um procedimento similar ao caso das sínteses em condições estáticas, descritos anteriormente.

[023] O sólido seco foi caracterizado por difração de raios X (DRX), adsorção de N<sub>2</sub> a 77 K (BET) e microscopia eletrônica de varredura (MEV). Estas técnicas permitiram identificar as fases cristalinas presentes nas amostras, bem como as suas propriedades texturais.

### **EXEMPLO 1 - 3**

[024] A cristalização da mistura reacional da ZSM-22 foi realizada em temperaturas entre 150-200°C, sem agitação. Os parâmetros de síntese são mostrados na Tabela 3.

Tabela 03 – Parâmetros de síntese do material produzido em sistema estático.

Parâmetros	Exemplo 1	Exemplo 2	Exemplo 3
CH <sub>3</sub> OH/SiO <sub>2</sub>	4,0	4,0	1,0
SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	50	100	100
OH <sup>-</sup> /SiO <sub>2</sub>	0,2	0,2	0,1
H <sub>2</sub> O/SiO <sub>2</sub>	18	18	18
Sementes/Gel de Síntese*	0,01	0,01	0,01
CH <sub>3</sub> OH/Sementes*	21,37	21,37	5,34
Temperatura preferencial (°C)	170	170	170
Tempo de cristalização (h)	6	5	3

\* Razão em massa.

[025] O difratograma de Raios X (DRX) do produto do exemplo 1 (Figura 1) mostra que após 6 horas de cristalização a ZSM-22 foi produzida sem contaminações de ZSM-5 ou cristobalita. O resultado indica que há formação da ZSM-22 em meio estático com boa cristalinidade.

[026] A Figura 2 apresenta o DRX da ZSM-22 obtido segundo o exemplo 2. Passadas 5 horas de cristalização, sem agitação, foi obtida a ZSM-22 pura e com melhor cristalinidade que o da Figura 1.

[027] Para o exemplo 3, a Figura 3 mostra o DRX da ZSM-22 cristalizada com o tempo de 3 horas. A mesma também se apresentou livre de contaminações e boa cristalinidade.

#### **EXEMPLO 4 - 5**

[028] A cristalização da mistura reacional da ZSM-22 foi realizada em temperaturas entre 150-200°C, com agitação constante de 400 rpm. Os parâmetros de síntese são mostrados na Tabela 4.

Tabela 04 – Parâmetros de síntese do material produzido em sistema agitado.

Parâmetros	Exemplo 4	Exemplo 5
CH <sub>3</sub> OH/SiO <sub>2</sub>	4,0	1,0
SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	100	100
OH/SiO <sub>2</sub>	0,2	0,2
H <sub>2</sub> O/SiO <sub>2</sub>	18	18
Sementes/Gel de Síntese*	0,01	0,01
CH <sub>3</sub> OH/Sementes*	21,37	5,34
Temperatura preferencial(°C)	170	170
Tempo de cristalização (h)	4	3

\* Razão em massa.

[029] As respectivas figuras 4 e 5, apresentam o gráfico de DRX dos exemplos 4 e 5. Em ambos exemplos foi formada a zeólita ZSM-22 com excelente cristalinidade.

[030] A tabela 05 apresenta resultados referentes ao cálculo da cristalinidade relativa de cada amostra, quando comparada com a amostra sintetizada com direcionador orgânico (ZSM-22 utilizada como sementes – figura 6) e área superficial do sólido obtido por BET. Todas as amostras foram submetidas à calcinação e troca iônica com solução de HCl (1M) antes da caracterização.

[031] O cálculo da cristalinidade relativa do material foi obtido utilizando os picos referentes a valores de  $2\theta$  das regiões de 19,7-20,9 e 23,6-25 graus, segundo a equação 01.

$$(Crist.\%) = \frac{\sum \text{Área dos picos da amostra}}{\sum \text{Área dos picos da amostra padrão}} \quad \text{Equação 01}$$

[032] A equação 01 expressa a relação entre as áreas superficiais e microporosas, obtidas por adsorção/desorção de nitrogênio à 77K para obtenção da área superficial (pontos  $P/P_0 = 0,06$  a  $0,20$ ) e volume de poros.

Tabela 05 – Cálculo da cristalinidade relativa e áreas superficiais BET e microporosa das amostras.

ZSM-22	Cristalinidade (%)	Área superficial BET ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	Volume microporoso ( $\text{cm}^3/\text{g}$ )
Orgânico	100	$216 \pm 3,5$	0,214
Exemplo 1	69	$97 \pm 1,6$	0,086
Exemplo 2	89	$170 \pm 2,8$	0,171
Exemplo 3	83	$210 \pm 2,9$	0,207
Exemplo 4	90	$189 \pm 3,1$	0,160
Exemplo 5	88	$220 \pm 3,0$	0,218

[033] O material possui boa área superficial e através das imagens da microscopia (figuras 7 e 8) foi possível observar um aglomerado de cristais, com formato cilíndrico e tamanho médio de 2  $\mu\text{m}$ , típico da estrutura.

[034] Como resultado dessa abordagem, objeto de pedido da patente, o presente documento traz o desenvolvimento de uma metodologia de síntese da ZSM-22 pura e com alta cristalinidade sem utilizar direcionadores orgânicos, em sistemas estáticos e agitados, e em baixos tempos de cristalização (tempos inferiores a 6 horas).

## **REIVINDICAÇÕES**

**1. PROCESSO DE PREPARAÇÃO DA ZEÓLITA TIPO ZSM-22 SEM A UTILIZAÇÃO DE DIRECIONADORES ÓRGÂNICOS DE ESTRUTURA** caracterizado por incluir na síntese uma mistura contendo: (i) uma fonte de óxido de silício, (ii) uma fonte de óxido de alumínio, (iii) uma fonte de metal alcalino, (iv) uma solução de metanol e água e (v) uma suspensão de sementes de cristalização em água (cristais sintetizados de ZSM-22 suspensos em água), obtendo-se o material denominado zeólita ZSM-22, em sistemas estáticos ou agitados, e tempos de cristalização inferiores a 6 horas, onde a faixa de composição é a mistura reacional composta da razão molar de CH<sub>3</sub>OH/SiO<sub>2</sub> entre 1,0 e 4,0; razão molar de SiO<sub>2</sub>/ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> entre 50 e 100; razão molar de OH<sup>-</sup>/SiO<sub>2</sub> entre 1,0 e 2,0; razão molar de H<sub>2</sub>O/SiO<sub>2</sub> entre 15 e 40; razão em massa de Sementes/Gel de síntese entre 0,006 e 0,01; e tempos de cristalização não superiores a 4 horas, para sistemas estáticos ou agitados e onde a razão mássica entre a quantidade de metanol e sementes (CH<sub>3</sub>OH/Sementes) adicionadas ao meio estão na faixa de 5 à 215.

**2. PROCESSO DE PREPARAÇÃO DA ZEÓLITA TIPO ZSM-22 SEM A UTILIZAÇÃO DE DIRECIONADORES ÓRGÂNICOS DE ESTRUTURA** de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por uma mistura reacional composta da razão molar de CH<sub>3</sub>OH/SiO<sub>2</sub> igual a 1,0; razão molar de SiO<sub>2</sub>/ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> entre 50 e 100; razão molar de OH<sup>-</sup>/SiO<sub>2</sub> entre 1,0 e 2,0; razão molar de H<sub>2</sub>O/SiO<sub>2</sub> entre 15 e 40; razão de massa de Sementes/Gel de síntese entre 0,006 e 0,01; e tempos de cristalização não superiores a 3 horas, para sistemas estáticos ou agitados.

**3. PROCESSO DE PREPARAÇÃO DA ZEÓLITA TIPO ZSM-22 SEM A UTILIZAÇÃO DE DIRECIONADORES ÓRGÂNICOS DE ESTRUTURA** de acordo com a reivindicação 1 e 2 caracterizado pela utilização de qualquer fonte de silício e cátions alcalinos junto e/ou separadamente, em substituição parcial ou total do silicato de sódio.

**4. PROCESSO DE PREPARAÇÃO DA ZEÓLITA TIPO ZSM-22 SEM A UTILIZAÇÃO DE DIRECIONADORES ÓRGÂNICOS DE ESTRUTURA** de acordo com a reivindicação 1, 2 e 3 caracterizado pela utilização de qualquer fonte de alumínio em substituição parcial ou total do sulfato de alumínio.

**5. PROCESSO DE PREPARAÇÃO DA ZEÓLITA TIPO ZSM-22 SEM A UTILIZAÇÃO DE DIRECIONADORES ÓRGÂNICOS DE ESTRUTURA** de acordo com a reivindicação 1, 2, 3 e 4 caracterizado por temperaturas de cristalização entre 150 e 200°C e tempos inferiores a 6 horas.

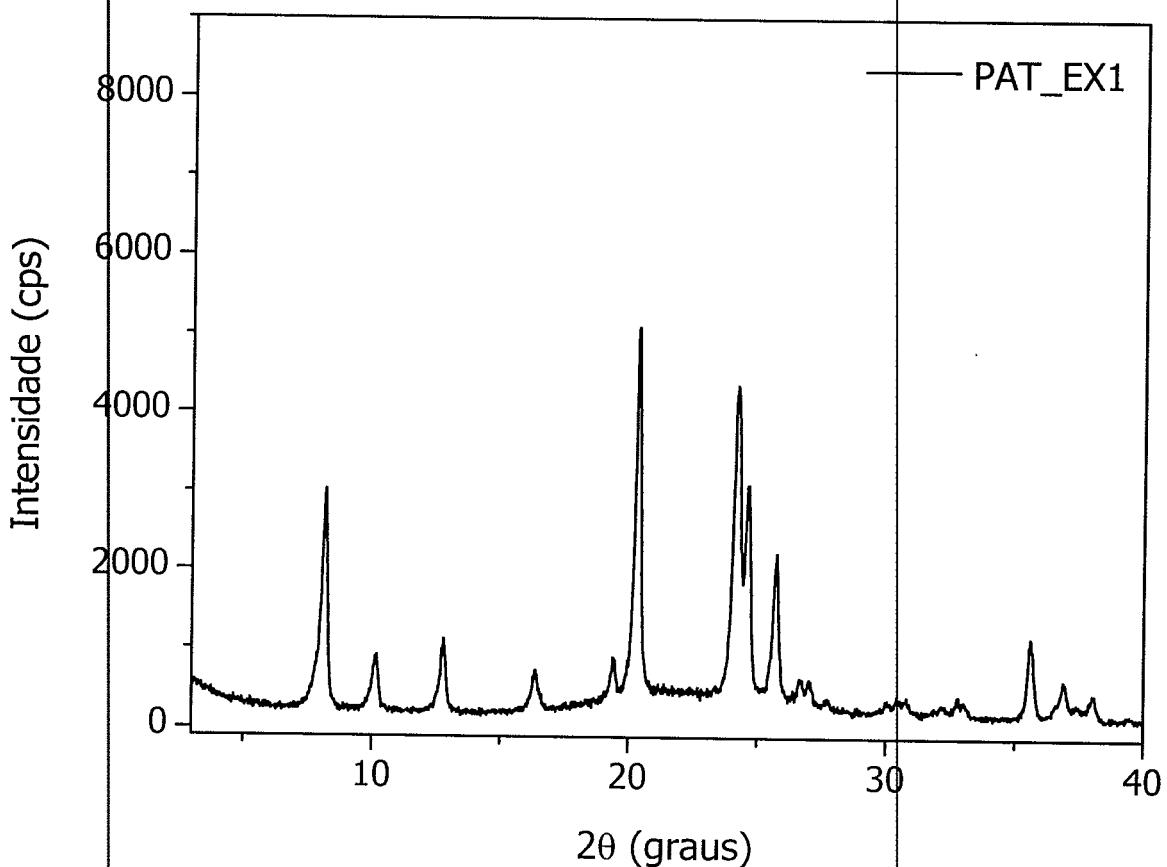


Fig. 1

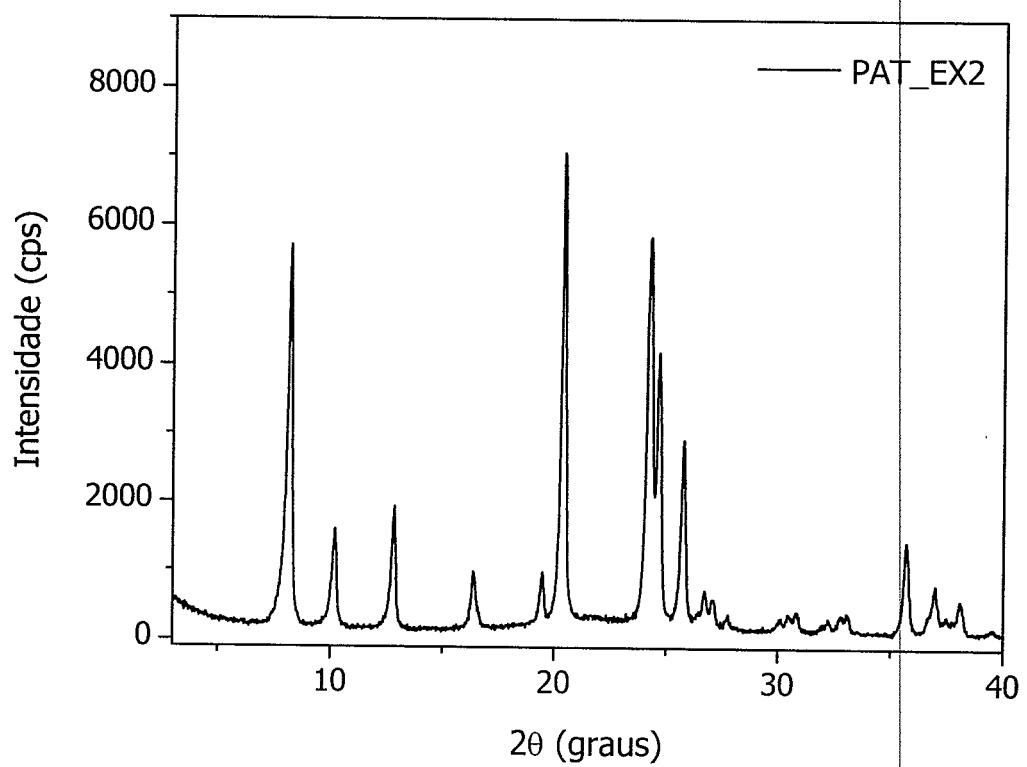


Fig. 2

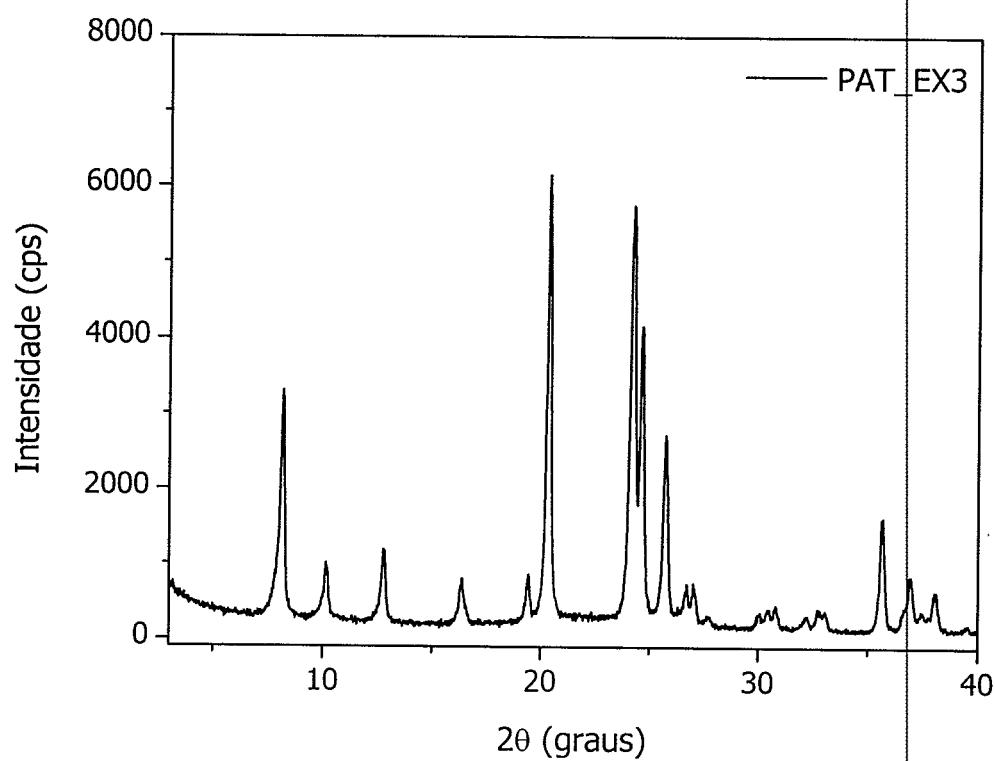


Fig. 3

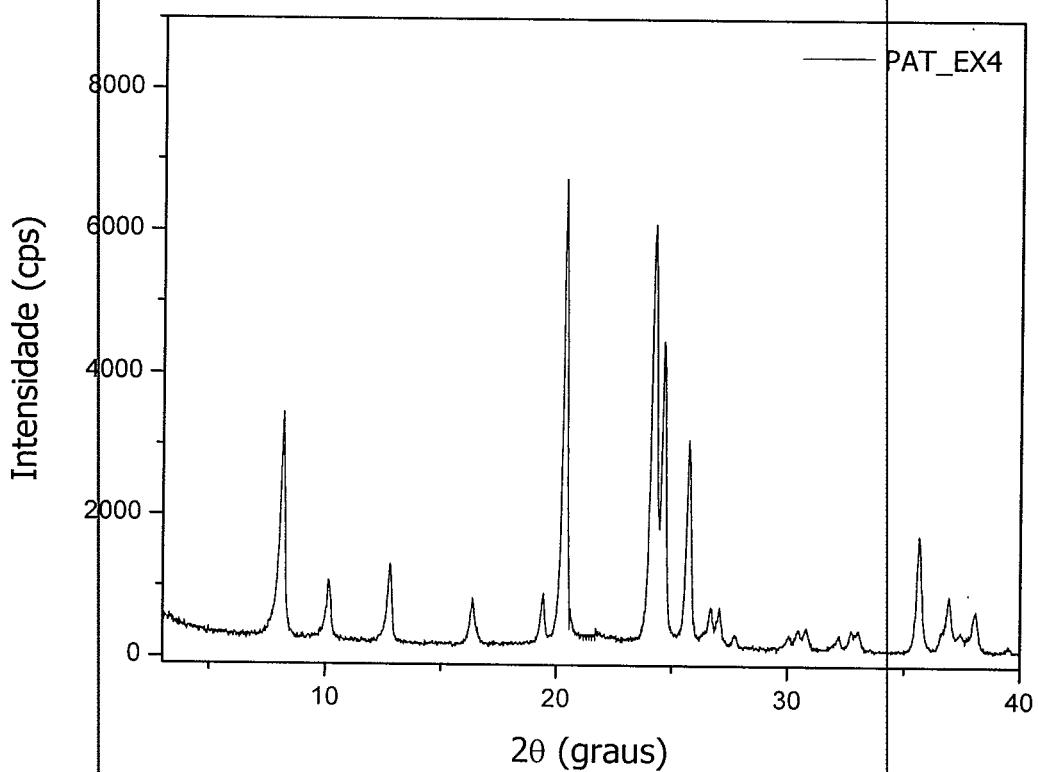


Fig. 4

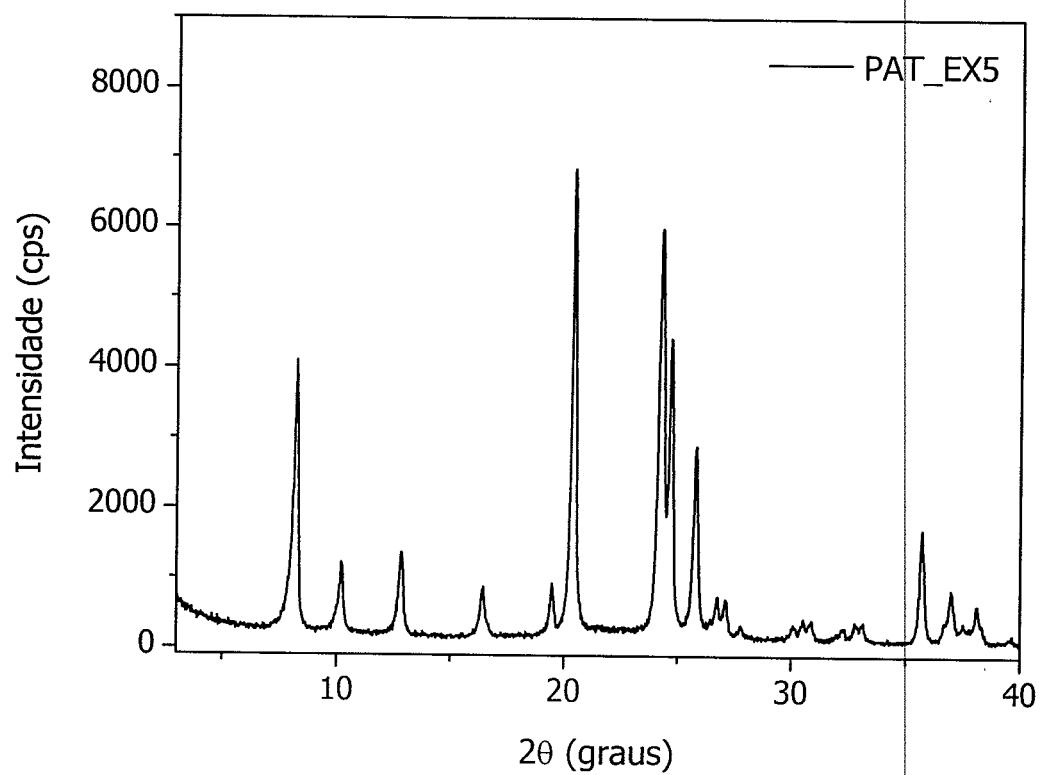


Fig. 5

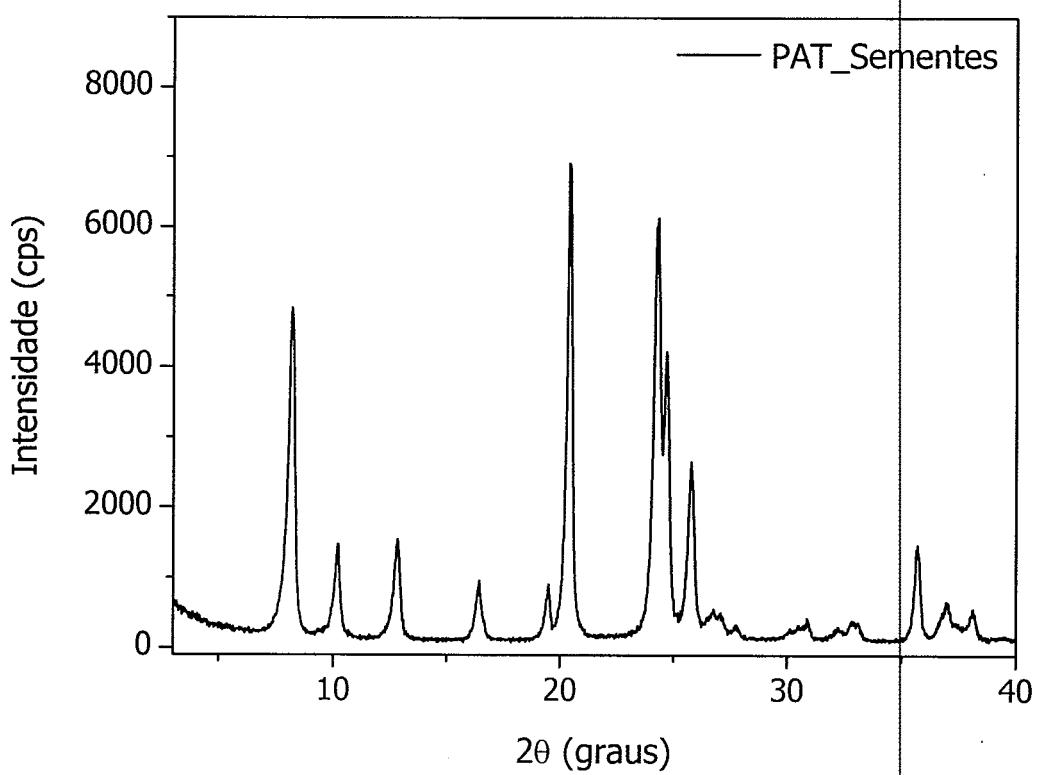


Fig 6

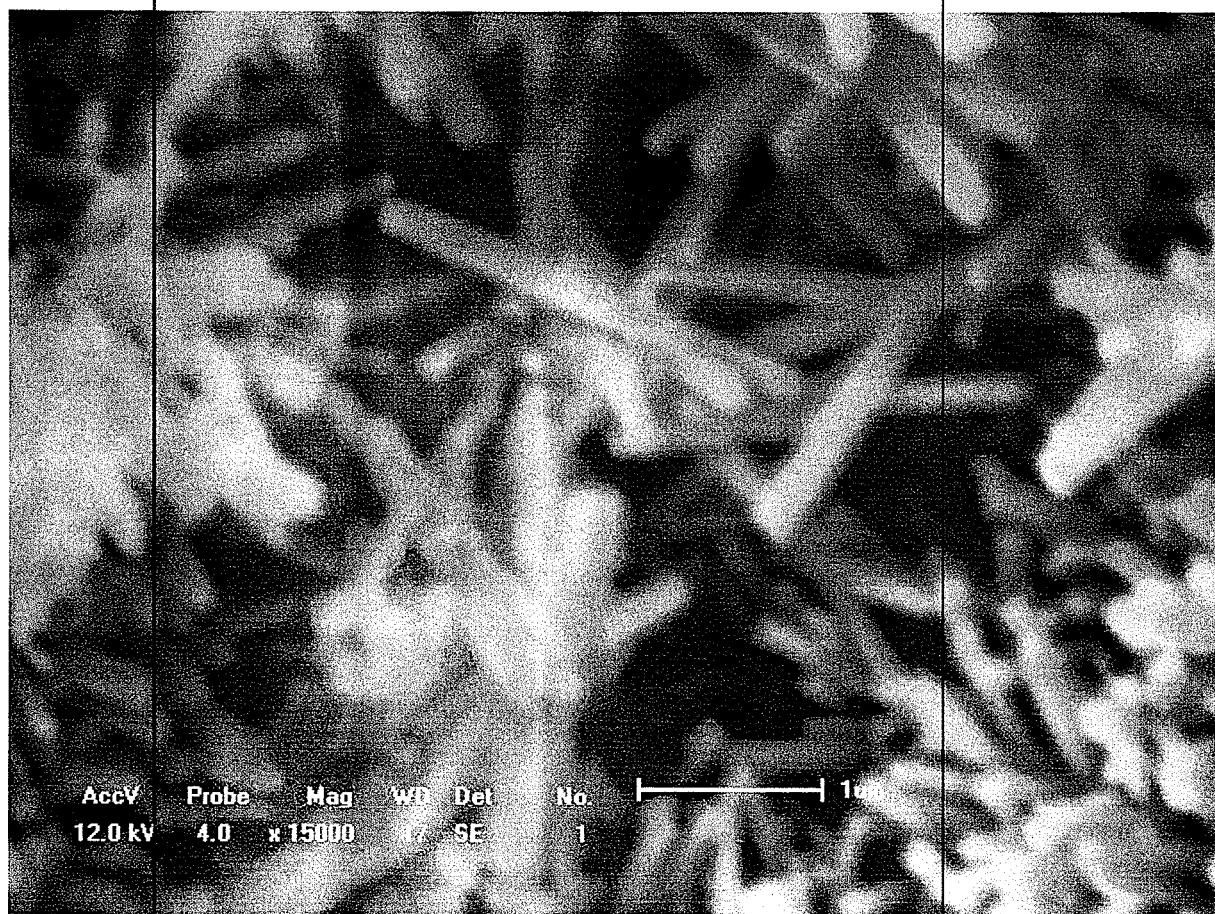


Fig. 7

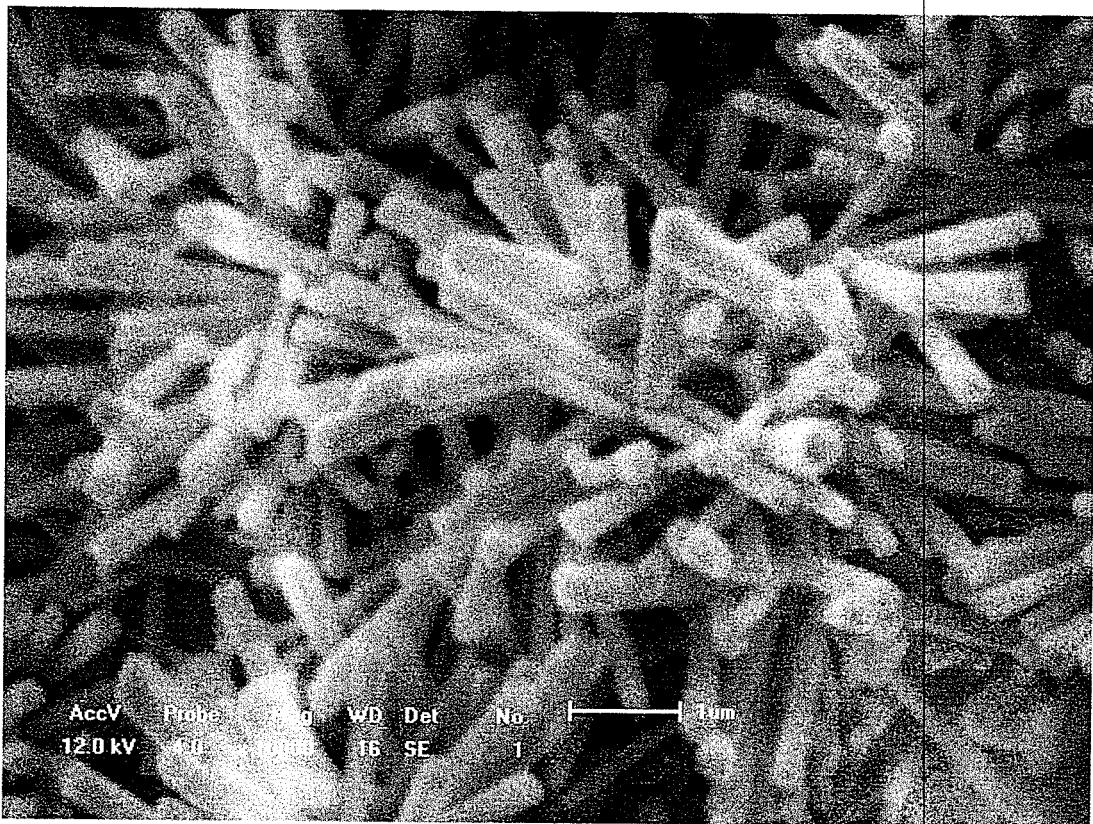


Fig. 8