



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11)



1-0027176

(51)^{2016.01} C07C 2/66; C07C 2/58; C10G 47/02;
C07C 5/22; C07C 6/12; B01J 29/70;
C07C 4/12

(13) B

(21) 1-2015-02073

(22) 02/12/2013

(86) PCT/US2013/072548 02/12/2013

(87) WO 2014/099325 26/06/2014

(30) 13/718,003 18/12/2012 US

(45) 25/01/2021 394

(43) 25/09/2015 330A

(73) UOP LLC (US)

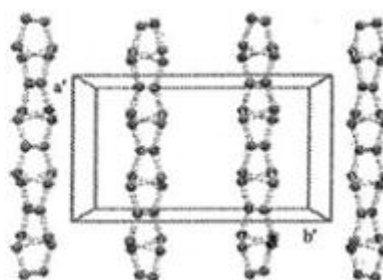
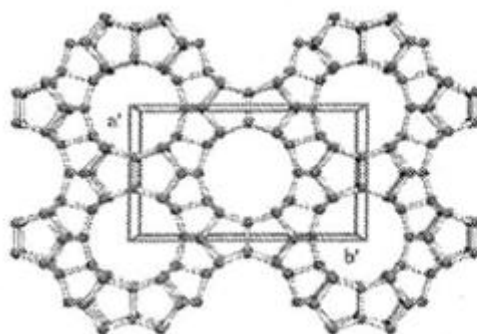
25 East Algonquin Road, P.O. Box 5017, Des Plaines, Illinois 60017-5017, United States of America

(72) JAN, Deng-Yang (US); MOSCOSO, Jaime G. (US); BOGDAN, Paula L. (US).

(74) Văn phòng Luật sư Ân Nam (ANNAM IP & LAW)

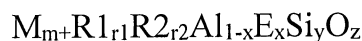
(54) QUY TRÌNH CHUYỂN HÓA HYDROCARBON

(57) Sáng chế đề cập đến một họ mới của các zeolit nhôm silicat tinh thể được tổng hợp được gọi là UZM-43. Các zeolit này tương tự với các zeolit ERS-10, SSZ-47 và RUB-35 đã biết trước đây nhưng khác biệt ở chỗ hình ảnh nhiễu xạ tia X độc nhất và thành phần và có các đặc tính xúc tác để thực hiện các quy trình chuyển hóa hydrocarbon khác nhau. Các chất xúc tác được tạo ra từ các zeolit này có ích trong các phản ứng chuyển hóa hydrocarbon.



Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến zeolit UZM-43, quy trình tạo ra zeolit này và sử dụng nó làm chất xúc tác cho các quy trình chuyển hóa hydrocarbon. Zeolit này được biểu diễn bằng công thức thực nghiệm sau:



với M là natri hoặc tổ hợp của các cation có thể trao đổi ion natri và kali, "m" là tỷ lệ mol của M trên (Al+E) và nằm trong khoảng từ 0,05 đến 5, R1 là cation propyltrimethylamoni điện tích đơn, "r1" là tỷ lệ mol của R trên (Al+E) và có giá trị nằm trong khoảng từ 0,25 đến 8,0, R2 là amin, "r2" là tỷ lệ mol của R trên (Al+E) và có giá trị nằm trong khoảng từ 0,0 đến 5, E là nguyên tố được chọn từ nhóm chỉ bao gồm gali, sắt, bo và các tổ hợp của chúng, "x" là phần mol của E và có giá trị nằm trong khoảng từ 0 đến 1,0, "y" là tỷ lệ mol của Si trên (Al+E) và nằm trong khoảng từ lớn hơn 5 đến khoảng 40 và "z" là tỷ lệ mol của O trên (Al+E) và có giá trị được xác định bằng công thức: $z = (m + r1 + r2 + 3 + 4 * y)/2$. Zeolit UZM-43 có bộ khung kết hợp EUO-NES-NON. Nó có thể có mặt trong chất xúc tác dưới dạng zeolit UZM-43 chưa biến đổi hoặc dưới dạng zeolit UZM-43 đã biến đổi. Chất xúc tác chứa UZM-43 có thể ở một trong vài dạng, bao gồm ví dụ, chất xúc tác nhỏ giọt trong dầu dạng cầu hoặc chất xúc tác dạng ép đùn.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Các zeolit là các chế phẩm nhôm silicat tinh thể có cấu trúc xốp mịn và được tạo ra từ góc dùng chung tứ diện AlO_2 và SiO_2 . Một lượng lớn các zeolit, cả có trong tự nhiên và được điều chế bằng cách tổng hợp, được sử dụng trong nhiều quy trình công nghiệp khác nhau. Các zeolit tổng hợp được điều chế bằng cách tổng hợp thủy nhiệt sử dụng các nguồn Si, Al thích hợp và các tác nhân tạo kết cấu như kim loại kiềm, các kim loại kiềm thổ, amin hoặc các cation amoni hữu cơ. Các tác nhân tạo kết cấu lưu trú trong các mao quản của zeolit và chịu trách nhiệm chính cho việc tạo ra cấu trúc cụ thể của zeolit. Loại này cân bằng sự nạp lên khung được kết hợp với nhôm và cũng có thể sử dụng như là các bộ lọc không gian. Các zeolit được đặc trưng ở chỗ có các lỗ mao quản có kích thước đồng nhất, có khả năng trao đổi ion đáng kể, và khả

năng của chúng để hấp phụ và giải hấp phụ thuận nghịch pha được hấp phụ phân tán trong các khoảng trống bên trong của tinh thể mà không cần phải di rời nhiều bất kỳ nguyên tử tạo nên cấu trúc tinh thể zeolit không đổi nào. Các zeolit có thể được sử dụng làm chất xúc tác cho các phản ứng chuyển hóa hydrocarbon xảy ra trên mặt ngoài cũng như mặt trong bên trong mao quản.

Ba loại cấu trúc EUO, NON và NES liên quan mật thiết đến nhau và có thể được tạo cấu trúc từ hai đơn vị cấu trúc dạng lớp tương tự nhau, LBU A và LBU B, được thể hiện mở rộng dưới đây trong các hướng trục a' và b' . LBU A gồm có tứ diện TO_4 được liên kết hai chiều để tạo ra tấm silicat với các lỗ vòng 12 thành phần. LBU B gồm có các chuỗi thẳng của tứ diện TO_4 . Để tạo ra cấu trúc khung ba chiều với EUO, NON và NES, các hai loại lớp được chồng lên nhau theo trình tự riêng biệt theo hướng trục c' .

Sơ đồ trên Fig.1 thể hiện các đơn vị cấu trúc dạng lớp của họ EUO-NES-NON như thường thấy là $(0\ 0\ 1)$. (a) Lớp A gồm có tứ diện $[TO_4]$ liên kết với nhau để tạo ra các vòng 12 thành phần và (b) lớp B gồm có các thanh tứ diện $[TO_4]$ chạy song song với trục a' .

Các sơ đồ ở trên thể hiện sự biểu hiện của các cấu trúc khung và các trình tự xếp chồng đối với (a) NON, (b) EUO và (c) NES như được thường thấy là $(1\ 0\ 0)$.

Đối với NON, chỉ có các lớp LBU A được xếp chồng lên nhau a). Trình tự xếp chồng là $AA'AA'$ với mỗi lớp A khác được dịch đi một đoạn $1/2a'$ và được gọi là A' . Mặc dù các lớp riêng rẽ chứa các vòng 12 thành phần, sự dịch chuyển các khối $1/2a'$ đạt được và khung NON thu được là ở trạng thái siêu tới hạn. Đó không thực sự là zeolit, mà là clathrasil, vì nó chứa các khung (được J.V.Smith gọi là nns) có thể tiếp cận bởi các mao quản không lớn hơn các vòng 6 thành phần.

Kiểu khung EUO có thể được tạo ra b) bằng cách chen lớp B giữa các lớp kép AA' tạo ra trình tự xếp chồng $AA'BAA'B$. Khung thu được chứa các kênh vòng 10 thành phần một chiều với các hốc bên thành các khung nns cụt.

Kiểu khung NES có thể được tạo ra c) bằng cách xen kẽ các lớp A và B để có trình tự xếp chồng $AB'A'BAB'A'B$ với A' và B' được dịch chuyển một khoảng $1/2a'$. Khung thu được chứa các kênh vòng 10 thành phần 2 chiều bình thường theo trục b' .

Một số sàng phân tử liên quan đã được bộc lộ nhưng có khác biệt đáng kể giữa các sàng phân tử này và sàng phân tử theo sáng chế. Trong patent US 6,123,914, EU-1 được bộc lộ và sàng phân tử kết hợp kiểu EUO-NES được sử dụng để loại bỏ B và nhôm vô định hình ra khỏi các kênh bằng cách sử dụng sự xử lý nhẹ với natri hydroxit. Sáng chế này liên quan đến vật liệu silic oxit/nhôm oxit không chứa Bo.

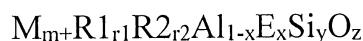
Bằng sáng chế Mỹ US 7,459,073 bộc lộ sàng phân tử SSZ-47B được tạo ra bằng cách sử dụng các tấm khuôn có các vòng và cứng (cation N-xyclopentyl-1,4-diaabixyclo[2.2.2] octan) có thể có chi phí để sản xuất đắt hơn và sẽ tạo ra zeolit có nhiều đặc tính EUO hơn so với các vật liệu khác.

Bằng sáng chế Mỹ US 5,910,299 bộc lộ zeolit ERS-10 zeolit được tạo ra sử dụng tấm khuôn dạng 6-azonia spiro-[5,5]-undecan hydroxit. Zeolit này được yêu cầu có tỷ lệ Si/Al₂ từ 50 đến silic oxit tinh khiết. Sáng chế này được tạo ra ở các tỷ lệ Si/Al₂ thấp hơn ERS-10.

Vật liệu mới đã được tạo ra bao gồm sự phát triển xen lẫn bộ khung EUO-NES-NON có ứng dụng trong các quy trình chuyển hóa hydrocarbon.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Như được đề cập, sáng chế đề cập đến zeolit nhôm silicat mới gọi là UZM-43 bao gồm bộ khung kết hợp EUO-NES-NON. Theo đó, một phương án của sáng chế là zeolit tinh thể cấu trúc xốp mịn có bộ khung ba chiều gồm ít nhất là các khối tứ diện AlO₂ và SiO₂ và thành phần thực nghiệm trên cơ sở khan như được tổng hợp được biểu diễn bằng công thức thực nghiệm sau:



với M là natri hoặc tổ hợp của các cation có thể trao đổi ion natri và kali, "m" là tỷ lệ mol của M trên (Al+E) và nằm trong khoảng từ 0,05 đến 5, R1 là cation propyltrimethylamoni điện tích đơn, "r1" là tỷ lệ mol của R trên (Al +E) và có giá trị nằm trong khoảng từ 0,25 đến 8,0, R2 là amin, "r2" là tỷ lệ mol của R trên (Al +E) và có giá trị nằm trong khoảng từ 0,0 đến 5, E là nguyên tố được chọn từ nhóm chỉ bao gồm gali, sắt, bo và tổ hợp của chúng, "x" là phần mol của E và có giá trị nằm trong khoảng từ 0 đến 1,0, "y" là tỷ lệ mol của Si trên (Al+E) và nằm trong khoảng từ lớn

hơn 5 đến khoảng 40 và "z" là tỷ lệ mol của O trên (Al+E) và có giá trị được xác định bằng công thức:

$$z = (m + r_1 + r_2 + 3 + 4 * y)/2$$

và khác biệt ở chỗ zeolit này có hình ảnh nhiễu xạ tia X có ít nhất các khoảng cách d và cường độ như nêu trong bảng A.

Bảng A

2-Theta	Khoảng cách d (Å)	Cường độ I/Io%
7,96-8,06	10,96-11,09	Trung bình
8,72-8,85	9,97-10,10	Yếu
9,40-9,41	9,36-9,40	Yếu
12,96-13,01	6,79-6,82	Yếu
19,10-19,17	4,62-4,64	Trung bình
20,54-20,62	4,30-4,32	Rất mạnh
22,23-22,33	3,97-3,99	Trung bình
23,29-23,42	3,79-3,81	Trung bình - Yếu
23,97-24,08	3,69-3,70	Trung bình
26,01-26,13	3,40-3,42	Yếu
26,54-26,62	3,34-3,35	Trung bình
27,24-27,32	3,26-3,27	Trung bình
28,86-29,00	3,07-3,09	Yếu
33,16-33,29	2,68-2,69	Yếu
35,46-35,52	2,52	Yếu

Sau khi nung, quan sát hình ảnh nhiễu xạ tia X được trình bày trong bảng B.

Bảng B

2-Theta	Khoảng cách d (Å)	Cường độ I/Io%
7,99-8,00	11,04	Mạnh

8,74	10,11	Yếu
9,42	9,38	Trung bình
12,96-12,99	6,80-6,82	Yếu
15,24-15,27	5,79-5,80	Yếu
15,98	5,54	Yếu
19,22-19,26	4,60-4,61	Trung bình
20,56-20,62	4,30-4,31	Rất mạnh
22,28-22,32	3,97-3,98	Mạnh
23,30	3,81	Trung bình
23,98-24,00	3,69-3,70	Trung bình
26,05-26,06	3,41	Yếu
26,67-26,72	3,33	Trung bình
27,30-27,35	3,25-3,26	Mạnh
28,94-29,01	3,07-3,08	Yếu
33,24-33,29	2,68-2,69	Yếu
35,66-35,68	2,51	Yếu

Khía cạnh khác của sáng chế là quy trình sản xuất vật liệu sử dụng cation propyltrimetylamoni (SACHEM) hoặc cation propyltrimetylamoni và amin. Các vật liệu SSZ-47 trước đây được tạo ra bằng cách sử dụng cation N,N-đimetyl-3-azoniabixyclo[4.2.1] nonan hoặc N,N-đimetyl-3-azoniabixyclo[3.2.1] octan có chi phí sản xuất đắt và tạo ra vật liệu có đặc tính EUO nhiều hơn so với các vật liệu được sản xuất theo sáng chế. ERS-10 được tạo ra với tấm khuôn đắt giá khác 6-azonia spiro-[5,5]-undecan hydroxit và tạo ra vật liệu zeolit có tỷ lệ Si/Al₂ cao hơn UZM-43.

Phương án khác nữa của sáng chế là đề xuất quy trình chuyển hóa hydrocarbon sử dụng zeolit được mô tả ở trên. Quy trình bao gồm cho hydrocarbon tiếp xúc với zeolit ở các điều kiện chuyển hóa để cho sản phẩm hydrocarbon được chuyển hóa. Quy trình chuyển hóa hydrocarbon bao gồm crackinh parafin, chuyển hóa hợp chất thơm ví dụ như đồng phân hóa xylen, phản ứng phân cắt bất cân xứng toluen, phản

ứng mở vòng và crackinh để loại bỏ các chất sôi cùng benzen và alkyl hóa các hợp chất thơm với các parafin.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Fig.1 thể hiện các đơn vị cấu trúc dạng lớp của họ EUO-NES-NON như thường thấy là (0 0 1).

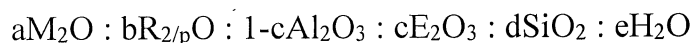
Fig.2 thể hiện các sự biểu hiện của các cấu trúc khung và các trình tự xếp chồng đối với (a) NON, (b) EUO và (c) NES như thường thấy là (1 0 0).

Mô tả chi tiết sáng chế

Các tác giả đã điều chế zeolit nhôm silicat mà cấu trúc hình học topo của nó vừa với bộ khung EUO-NES-NON và tương tự như loại zeolit RUB-35, SSZ-47 và ERS-10 như được mô tả trong Atlas về các kiểu khung zeolit được lưu trữ bởi Ủy ban cấu trúc zeolit quốc tế tại địa chỉ <http://topaz.ethz.ch/IZA-SC/StdAtlas.htm>. Các zeolit mới này đã được đặt tên là UZM-43. Như sẽ được trình bày chi tiết, UZM-43 khác với các zeolit đã biết ở số lượng các đặc tính của nó.

Như sẽ trình bày chi tiết trong các ví dụ, vật liệu UZM-43 ổn định nhiệt đến nhiệt độ ít nhất là 600°C và theo phương án khác, lên đến ít nhất 800°C. Cũng như được thể hiện trong các ví dụ, vật liệu UZM-43 có thể có thể tích vi mao quản tính theo phần trăm trên tổng thể tích mao quản là lớn hơn 60%.

Vật liệu UZM được tạo ra từ hỗn hợp phản ứng có thành phần được biểu diễn về mặt tỷ lệ mol của các oxit là:



với "a" có giá trị từ 0,05 đến 5,0, "b" có giá trị từ 1,5 đến 40, "c" có giá trị từ 0 đến 1,0, "d" có giá trị từ 4 đến 40, "e" có giá trị từ 25 đến 4000. Nguồn của M được chọn từ nhóm chỉ bao gồm các muối halogenua, các muối nitrat, các muối axetat, các hydroxit, các muối sulfat và tổ hợp của chúng.

Nguồn của E được chọn từ nhóm chỉ bao gồm các borat kiềm, axit boric, gali oxyhydroxit kết tủa, gali sulfat, sắt (III) sulfat, sắt (III) clorua và tổ hợp của chúng. Nguồn nhôm được chọn từ nhóm chỉ bao gồm nhôm isopropoxit, nhôm sec-butoxit, nhôm oxit kết tủa, $Al(OH)_3$, nhôm kim loại và các muối nhôm. Nguồn silic được chọn từ nhóm chỉ bao gồm tetraethyorthosilicat, silic oxit hun khói, keo silic oxit và silic

oxit kết tủa. Hỗn hợp phản ứng được phản ứng ở nhiệt độ từ 150° đến 185°C trong thời gian từ 1 ngày đến 3 tuần. Tốt hơn nếu, hỗn hợp phản ứng được phản ứng ở nhiệt độ từ 165° đến 175°C trong thời gian từ 1 ngày đến 3 tuần. R1 là cation propyltrimethylamoni điện tích đơn, "r1" là tỷ lệ mol của R trên (Al +E) và có giá trị từ 0,25 đến 8,0, và R2 là amin, r2 là các mocpholin. Quy trình có thể còn bao gồm bổ sung các hạt UZM-43 vào hỗn hợp phản ứng.

Ví dụ thực hiện sáng chế

Ví dụ 1

Gel phản ứng nhôm silicat được điều chế bằng cách trước hết trộn 48,92 g natri aluminat lỏng (LSA) (dung dịch 46,55%), 225,23 g propyltrimethylamoni hydroxit (SACHEM 20%), 36,11 g mocpholin (Aldrich) và 865,38 g nước trong khi khuấy mạnh. Sau khi trộn đều, bổ sung thêm 224,36 g Ultrasil VN SP 89%. Sau khi bổ sung xong, hỗn hợp phản ứng thu được được đồng nhất hóa trong thời gian 1 giờ, được chuyển vào nồi hơi có cánh khuấy bằng thép không gỉ Parr dung tích 2-L. Hỗn hợp được kết tinh ở nhiệt độ 175°C cùng với khuấy ở tốc độ 250 vòng/phút trong thời gian 160 giờ. Sản phẩm rắn được thu hồi nhờ ly tâm, được rửa với nước đã khử ion và sấy khô ở nhiệt độ 95°C. Sản phẩm được xác định là UZM-43 nhờ phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD). Các đường nhiễu xạ tiêu biểu quan sát được đối với sản phẩm được trình bày trong bảng 1. Thành phần sản phẩm được xác định bằng phân tích nguyên tố gồm có các tỷ lệ mol sau đây: Si/Al = 13,76, Na/Al = 0,23. Một phần vật liệu được nung bằng cách tăng nhiệt độ đột ngột đến 600°C trong thời gian 2 giờ sau đó để yên trong không khí trong thời gian 6 giờ. Diện tích bề mặt BET là 176 m²/g và thể tích vi mao quản là 0,07 cc/g. Hình ảnh kính hiển vi quét điện tử (Scanning Electron Microscopy (SEM)) cho thấy các tinh thể dạng tròn (tương tự quả nho) nhỏ hơn 100 nm. Phân tích hóa học cho kết quả như sau: 3,06% Al, 42,9% Si, 0,99% Na, N/Al=0,78, Na/Al=0,38, Si/Al₂=27. Các đường nhiễu xạ quan sát được đối với UZM-43 được trình bày trong bảng 1 như sau.

Bảng 1

2-Theta	Khoảng cách d (Å)	Cường độ I/Io%
8,02	11,01	Trung bình
8,72	10,13	Yếu

9,4	9,4	Trung bình
13,01	6,79	Yếu
19,17	4,62	Trung bình
20,62	4,3	Rất mạnh
22,29	3,98	Trung bình
23,38	3,8	Yếu
23,58	3,76	Yếu
24,00	3,7	Trung bình
24,53	3,62	Yếu
26,10	3,41	Yếu
26,60	3,34	Trung bình
27,32	3,26	Trung bình
29,00	3,07	Yếu
33,29	2,68	Yếu
35,52	2,52	Yếu

Các đường nhiễu xạ tiêu biểu quan sát được đối với UZM-43 đã nung được thể hiện trong Bảng 2.

Bảng 2

2-Theta	Khoảng cách d (Å)	Cường độ I/Io%
7,99	11,04	Mạnh
9,42	9,38	Trung bình
12,99	6,80	Yếu
14,77	5,98	Yếu
15,27	5,79	Yếu
15,98	5,54	Yếu
19,22	4,61	Mạnh
20,62	4,30	Rất mạnh
22,32	3,97	Mạnh
23,98	3,70	Trung bình
26,06	3,41	Trung bình
26,72	3,33	Trung bình
27,30	3,26	Mạnh
28,48	3,13	Yếu
29,01	3,07	Yếu

33,24	2,69	Yếu
35,66	2,51	Yếu

Ví dụ 2

Gel phản ứng nhôm silicat được điều chế bằng cách trước hết trộn 48,92 g natri aluminat lỏng (LSA) (dung dịch 46,55%), 225,23 g propyltrimetylamonium hydroxit (SACHEM 20%), 36,11 g mocpholin (Aldrich) và 865,38 g nước trong khi khuấy mạnh. Sau khi trộn đều, bổ sung thêm 224,36 g Ultrasil VN SP 89%. Sau khi bổ sung xong, hỗn hợp phản ứng thu được được đồng nhất hóa trong thời gian 1 giờ, được chuyển vào nồi hơi có cánh khuấy bằng thép không gỉ Parr dung tích 2-L. Hỗn hợp được kết tinh ở nhiệt độ 175°C cùng với khuấy ở tốc độ 350 vòng/phút trong thời gian 160 giờ. Sản phẩm rắn được thu hồi nhờ ly tâm, được rửa với nước đã khử ion và sấy khô ở nhiệt độ 95°C. Sản phẩm được xác định là UZM-43 nhờ phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD). Các đường nhiễu xạ tiêu biểu quan sát được đối với sản phẩm được trình bày trong bảng 3. Thành phần sản phẩm được xác định bằng phân tích nguyên tố gồm có các tỷ lệ mol sau đây: Si/Al = 13,5, Na/Al = 0,38 và N/Al=0,78. Một phần vật liệu được nung bằng cách tăng đột ngột đến nhiệt độ 600°C trong thời gian 2 giờ sau đó để yên trong không khí trong thời gian 6 giờ. Diện tích bề mặt BET là 192 m²/g và thể tích vi mao quản là 0,07 cc/g. Hình ảnh kính hiển vi quét điện tử (SEM) cho thấy các tinh thể dạng tròn nhỏ hơn 100 nm.

Bảng 3

2-Theta	Khoảng cách d (Å)	Cường độ I/I ₀ %
7,96	11,09	Trung bình
8,72	10,10	Yếu
9,41	9,36	Yếu
12,96	6,82	Yếu
19,10	4,64	Trung bình
20,54	4,32	Rất mạnh
22,23	3,99	Trung bình
23,29	3,81	Yếu
23,97	3,70	Trung bình
26,01	3,42	Yếu

26,54	3,35	Trung bình
27,24	3,27	Trung bình
28,86	3,09	Yếu
33,16	2,69	Yếu
35,49	2,52	Yếu

Ví dụ 3

Gel phản ứng nhôm silicat được điều chế bằng cách trước hết trộn 36,61 g natri aluminat lỏng (LSA) (dung dịch 46,55%), 24,3 g natri hydroxit (dung dịch 50%) và 749,05 g nước trong khi khuấy mạnh. Sau khi trộn đều, bổ sung thêm 421,53 g propyltrimetylamonium bromua (SACHEM 25%) và sau đó bổ sung thêm 167,99 g Ultrasil VN SP 89%. Sau khi bổ sung xong, hỗn hợp phản ứng thu được được đồng nhất hóa trong thời gian 1 giờ, được chuyển vào nồi hơi có cánh khuấy bằng thép không gỉ Parr dung tích 2-L. Hỗn hợp được kết tinh ở nhiệt độ 175°C cùng với khuấy ở tốc độ 350 vòng/phút trong thời gian 132 giờ. Sản phẩm rắn được thu hồi nhờ ly tâm, được rửa với nước đã khử ion và sấy khô ở nhiệt độ 95°C. Sản phẩm được xác định là UZM-43 nhờ phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD). Các đường nhiễu xạ tiêu biểu quan sát được đối với sản phẩm được trình bày trong bảng 4. Thành phần sản phẩm được xác định bằng phân tích nguyên tố gồm có các tỷ lệ mol sau đây: Si/Al = 13,05, Na/Al = 0,34. Một phần vật liệu được nung bằng cách tăng đột ngột đến nhiệt độ 600°C trong thời gian 2 giờ sau đó để yên trong không khí trong thời gian 6 giờ. Diện tích bề mặt BET là 292 m²/g và thể tích vi mao quản là 0,101 cc/g. Hình ảnh kính hiển vi quét điện tử (SEM) cho thấy các tinh thể dạng tròn nhỏ hơn 100 nm.

Bảng 4

2-Theta	Khoảng cách d (Å)	Cường độ I/I ₀ %
8,06	10,96	Trung bình
8,85	9,97	Yếu
12,98	6,81	Yếu
19,16	4,62	Trung bình
20,62	4,30	Rất mạnh
22,33	3,97	Mạnh
23,42	3,79	Trung bình

24,08	3,69	Trung bình
26,13	3,40	Trung bình
26,62	3,34	Trung bình
27,28	3,26	Mạnh
28,41	3,13	Yếu
28,98	3,07	Yếu
30,35	2,94	Yếu
35,46	2,52	Yếu

Các đường nhiễu xạ tiêu biểu quan sát được đối với UZM-43 đã nung được trình bày trong bảng 5.

Bảng 5

2-Theta	Khoảng cách d (Å)	Cường độ I/Io%
8,00	11,04	Mạnh
8,74	10,11	Yếu
12,96	6,82	Yếu
15,24	5,80	Yếu
19,26	4,60	Trung bình
20,56	4,31	Rất mạnh
22,28	3,98	Mạnh
23,30	3,81	Trung bình
24,00	3,70	Trung bình
26,05	3,41	Trung bình
26,67	3,33	Trung bình
27,35	3,25	Mạnh
28,45	3,13	Yếu
28,94	3,08	Yếu
30,20	2,95	Yếu
33,29	2,68	Yếu
35,68	2,51	Yếu

UZM-43 được tổng hợp theo các ví dụ 1 và 2 được tạo công thức thành chất xúc tác chứa 70% UZM-43 và 30% nhôm oxit. Trong điều chế chất xúc tác, nhôm oxit

Catapal B trước hết được peptit hóa với axit nitric sử dụng 0,17 g HNO_3 trên mỗi gam nhôm oxit Catapal B. Nhôm oxit đã peptit hóa sau đó được đưa vào cối nghiền, trong khi trộn, cho đến khi thu được hỗn hợp bột nhão với độ đặc phù hợp với việc ép đùn. Sau đó hỗn hợp bột nhão được ép đùn để tạo ra các khối trụ đường kính 1/16" (khoảng 1,6mm), các khối này được sấy khô ở nhiệt độ 100°C qua đêm và sau đó được định kích thước với tỷ lệ chiều dài trên đường kính gần bằng 3. Các thỏi ép đùn khô được nung trong lò với không khí lưu thông ở nhiệt độ 600°C trong thời gian 5 giờ để tháo khuôn. Chất nền sau khi nung này sau đó được trao đổi ion sử dụng dung dịch NH_4NO_3 10% trọng lượng tại nhiệt độ 75°C trong thời gian 1 giờ. Sau đó sử dụng nước sạch để rửa với lượng 10 g trên mỗi g zeolit. Trao đổi ion với NH_4NO_3 và rửa với nước được lặp lại thêm hai lần nữa. Sau đó thỏi ép đùn được sấy khô ở nhiệt độ 120°C trong thời gian 4 giờ và sau đó hoạt hóa ở nhiệt độ 550°C.

Với mỗi mẫu được liệt kê trong bảng 1, thực hiện so sánh hình ảnh nhiễu xạ quan sát được với các hình ảnh mô phỏng DIFFaX để có các mô hình xác suất chuyển hóa αN và αS , chỉ ra xu hướng tạo chùm EUO, NES, và NON. Phần trăm của EUO, NES, và NON được tính từ các xác suất chuyển hóa. Các mô hình phù hợp nhất được tóm tắt trong bảng 6.

Bảng 6: Kết quả từ các mô hình DIFFaX của các mẫu thực nghiệm

Mẫu	Xu hướng tạo chùm			Phần trăm trọng lượng		
	EUO	NES	NON	EUO	NES	NON
Mẫu 1	0,67	0,58	0,75	34	31	34
Mẫu 2	0,67	0,58	0,75	34	31	34
Mẫu 3	0,73	0,53	0,80	33	24	43
SSZ-47	0,40	0,70	0,90	18	28	54
RUB-35	1,60	0,10	0,30	82	6	12
ERS-10	0,75	0,50	0,75	38	25	38

Các mẫu 1 và 2: Các mẫu được tổng hợp 1 và 2 có các hình ảnh nhiễu xạ rất giống nhau và có thể phù hợp với các hình ảnh mô phỏng DIFFaX. Chúng đều chỉ thể hiện xu hướng tạo chùm nhẹ trong các vùng tương tự NES và xu hướng tạo chùm nhẹ hơn trong các vùng tương tự EUO và NON dẫn đến cấu trúc có đặc tính EUO và NON nhiều hơn NES một chút.

Mẫu 3: mẫu được tổng hợp 3 có hình ảnh nhiễu xạ hơi khác hơn hai mẫu trước. Hình ảnh có thể trùng khớp với hình ảnh mô phỏng chỉ ra mẫu có nhiều đặc tính NON hơn một chút và ít đặc tính EUO hơn hai mẫu trước.

Liên quan đến sự nhiễu xạ của các mẫu đã có, tiến hành các quan sát sau đây.

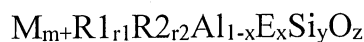
ERS-10. Trong số các mẫu đã có, ERS-10 có hình ảnh nhiễu xạ giống nhất với sáng chế, mặc dù vẫn có các khác biệt rõ rệt. Hình ảnh đó có thể trùng khớp với mô phỏng chỉ ra thành phần tương tự nhưng với hàm lượng EUO nhiều hơn một chút và tỷ lệ Si/Al₂ cao hơn UZM-43.

Hình ảnh nhiễu xạ đối với SSZ-47 khác với các mẫu 1, 2 và 3 và phù hợp với cấu trúc chứa nhiều đặc tính NON hơn.

RUB-35 có hình ảnh nhiễu xạ khác biệt nhất với các mẫu minh họa sáng chế. Hình ảnh nhiễu xạ của nó phù hợp với cấu trúc có đặc tính EUO cao. Mô hình tạo đứt gãy trong RUB-35 được phát triển không xét đến sự tạo chùm. Cấu trúc phù hợp nhất của chúng là đặc tính kiểu 78% EUO và 22% NON. Mô hình được báo cáo ở đây cho kết quả tương tự (82% EUO, 12% NON, 8% NES) nhưng cũng chỉ ra một số đặc tính kiểu NES.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Quy trình chuyển hóa hydrocarbon bao gồm cho dòng hydrocarbon tiếp xúc với chất xúc tác ở các điều kiện chuyển hóa hydrocarbon để thu được sản phẩm chuyển hóa, chất xúc tác bao gồm zeolit tinh thể cấu trúc xốp mịn UZM-43 đã biến đổi, trong đó UZM-43 đã biến đổi có bộ khung ba chiều gồm ít nhất các khối tứ diện AlO_2 và SiO_2 và thành phần thực nghiệm trên cơ sở khan được biểu diễn bằng công thức thực nghiệm sau:



trong đó: M là natri hoặc tổ hợp của các cation có thể trao đổi ion natri và kali, "m" là tỷ lệ mol của M trên (Al+E) và nằm trong khoảng từ 0,05 đến 5, R1 là cation propyltrimethylamoni điện tích đơn, "r1" là tỷ lệ mol của R trên (Al +E) và có giá trị từ 0,25 đến 8,0, R2 là amin, "r2" là tỷ lệ mol của R trên (Al +E) và có giá trị từ 0,0 đến 5, E là nguyên tố được chọn từ nhóm chỉ bao gồm gali, sắt, bo và tổ hợp của chúng, "x" là phân mol của E và có giá trị từ 0 đến 1,0, "y" là tỷ lệ mol của Si trên (Al+E) và nằm trong khoảng từ lớn hơn 5 đến 40 và "z" là tỷ lệ mol của O trên (Al+E) và có giá trị được xác định bằng công thức:

$$z = (m + r1 + r2 + 3 + 4 * y)/2$$

và khác biệt ở chỗ, zeolit này có hình ảnh nhiễu xạ tia X có ít nhất các khoảng cách d và các cường độ được trình bày trong bảng A:

bảng A

2-Theta	Khoảng cách d (Å)	Cường độ I/Io%
7,96-8,06	10,96-11,09	Trung bình
8,72-8,85	9,97-10,10	Yếu
9,40-9,41	9,36-9,40	Yếu
12,96-13,01	6,79-6,82	Yếu
19,10-19,17	4,62-4,64	Trung bình

20,54-20,62	4,30-4,32	Rất mạnh
22,23-22,33	3,97-3,99	Trung bình
23,29-23,42	3,79-3,81	Trung bình - Yếu
23,97-24,08	3,69-3,70	Trung bình
26,01-26,13	3,40-3,42	Yếu
26,54-26,62	3,34-3,35	Trung bình
27,24-27,32	3,26-3,27	Trung bình
28,86-29,00	3,07-3,09	Yếu
33,16-33,29	2,68-2,69	Yếu
35,46-35,52	2,52	Yếu

và ổn định nhiệt lên đến nhiệt độ ít nhất là 600°C và có diện tích bề mặt BET nhỏ hơn 420 m²/g, trong đó zeolit tinh thể vi xốp UZM-43 đã biến đổi có cấu trúc khung EUO-NES-NON bao gồm từ 33-34% trọng lượng EUO, 24-31% trọng lượng NES và 34-43% trọng lượng NON.

2. Quy trình theo điểm 1, trong đó quy trình chuyển hóa hydrocarbon được chọn từ nhóm chỉ bao gồm alkyl hóa, khử alkyl hóa, chuyển nhóm alkyl hóa các hợp chất thơm, đồng phân hóa các hợp chất thơm, alkyl hóa các olefin với isoparafin, nhị trùng hóa olefin, oligom hóa olefin, crackinh xúc tác, và tách parafin.

3. Quy trình theo điểm 1, trong đó chất xúc tác còn bao gồm nhôm oxit.

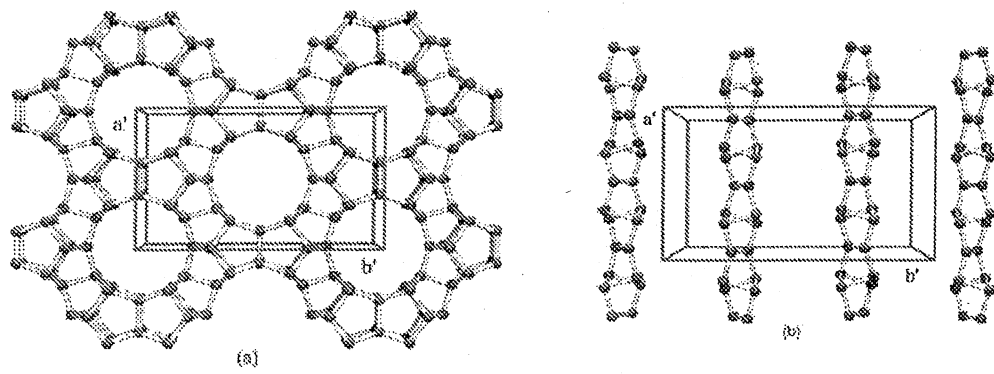


FIG. 1

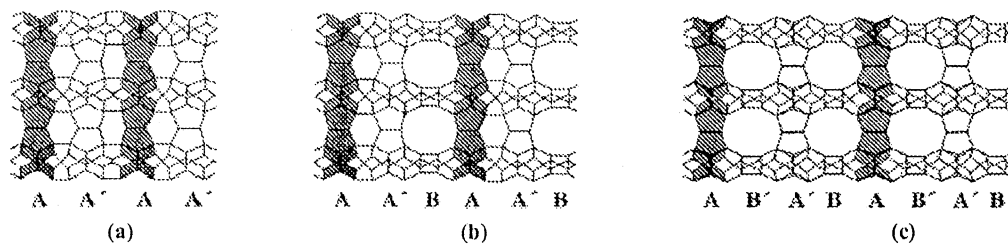


FIG. 2