



(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)



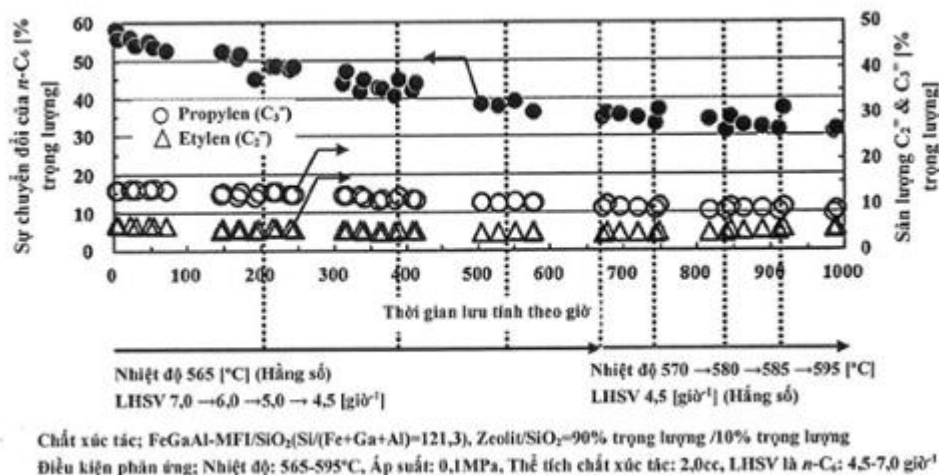
1-0031151

(51)⁷ **B01J 29/46; B01J 37/00; B01J 38/12; (13) B**
C10G 11/05; C07C 11/04; C07C 11/06;
C07C 4/06; B01J 29/90; C07B 61/00

- (21) 1-2017-00676 (22) 31/07/2015
(86) PCT/JP2015/071761 31/07/2015 (87) WO 2016/017794 A1 04/02/2016
(30) 2014-157518 01/08/2014 JP
(45) 25/02/2022 407 (43) 25/05/2017 350A
(73) CHIYODA CORPORATION (JP)
4-6-2, Minatomirai, Nishi-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 220-8765 Japan
(72) HODOSHIMA Shinya (JP); YAGI Fuyuki (JP); MOTOMIYA Azusa (JP);
WAKAMATSU Shuhei (JP).
(74) Công ty TNHH một thành viên Sở hữu trí tuệ VCCI (VCCI-IP CO.,LTD)

(54) CHẤT XÚC TÁC HỖN HỢP, PHƯƠNG PHÁP SẢN XUẤT CHẤT XÚC TÁC
HỖN HỢP VÀ PHƯƠNG PHÁP SẢN XUẤT OLEFIN BẬC THẤP

(57) Sáng chế đề cập đến việc sản xuất olefin bậc thấp bằng cách sử dụng chất xúc tác zeolit, chất xúc tác hỗn hợp có khả năng kéo dài tuổi thọ của hoạt tính xúc tác, và sáng chế còn đề cập đến phương pháp sản xuất chất xúc tác hỗn hợp, phương pháp sản xuất olefin bậc thấp bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp, và phương pháp tái chế chất xúc tác hỗn hợp trong phương pháp sản xuất olefin bậc thấp. Chất xúc tác hỗn hợp là chất xúc tác dùng để sản xuất olefin bậc thấp từ nguyên liệu hydrocacbon. Chất xúc tác hỗn hợp này được cấu thành từ zeolit là nhôm silicat kết tinh chứa gali và sắt hoặc sắt và còn có khung cấu tạo gồm vòng 8 đến 12 phần tử, và silic dioxit. Bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp này, olefin bậc thấp có thể được sản xuất liên tục trong một khoảng thời gian dài.



Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến chất xúc tác hỗn hợp dùng để sản xuất olefin bậc thấp được sử dụng trong việc sản xuất olefin bậc thấp từ nguyên liệu hydrocacbon, phương pháp sản xuất chất xúc tác hỗn hợp, phương pháp sản xuất olefin bậc thấp bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp, và phương pháp tái chế chất xúc tác hỗn hợp trong phương pháp sản xuất olefin bậc thấp.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Có một nhu cầu ngày càng tăng đối với olefin bậc thấp (etylen hoặc propylen) mà là nguyên liệu cơ bản quan trọng trong lĩnh vực hóa học dầu mỏ trong tương lai. Hiện nay, 60% propylen được sản xuất thông qua bước crackinh bằng hơi nước (thiết bị crackinh bằng hơi nước) của naphta hoặc quy trình xử lý tương tự. Tuy nhiên, kỹ thuật này đòi hỏi nhiệt độ cao từ 800 đến 900°C cho sự phân hủy bởi vì không có mặt chất xúc tác, và đây là một quy trình tốn nhiều năng lượng do việc nạp hơi nước quá mức.

Ngoài ra, sản phẩm chủ yếu của kỹ thuật được mô tả ở trên là etylen, và propylen được tạo ra như một sản phẩm phụ, do đó, trong trường hợp mà ở đó naphta được sử dụng làm nguyên liệu, thì tỷ lệ sản xuất được cố định trong khoảng là etylen/propylen = 2/1. Có khả năng xảy ra một tình huống là việc cung cấp propylen có thể không theo kịp với nhu cầu ngày càng tăng đối với propylen trong tương lai. Theo quan điểm nêu trên, có một nhu cầu cấp thiết về một quy trình xử lý thay thế để sản xuất hiệu quả propylen từ nguyên liệu naphta với mức tiêu thụ năng lượng ít nhất có thể.

Hiện nay, đối với phương pháp thay thế cho phương pháp sử dụng thiết

bị crackinh bằng hơi nước mà là phương pháp sản xuất propylen tiết kiệm năng lượng, thì phương pháp crackinh bằng chất xúc tác naphta loại tầng cố định sử dụng chất xúc tác zeolit được áp dụng, đã được nghiên cứu và phát triển.

Ví dụ, có đề xuất đối với nhôm silicat kết tinh có cấu trúc loại MFI chứa sắt hoặc sắt và gali được sử dụng làm chất xúc tác khi olefin bậc thấp được sản xuất từ nguyên liệu hydrocacbon có nhiệt độ sôi thấp như naphta nhẹ (xem ví dụ, các tài liệu sáng chế từ 1 đến 3).

Đối với chất xúc tác zeolit được mô tả trong các tài liệu sáng chế từ 1 đến 3 này, có nhiệt độ phản ứng tương đối thấp, lượng propylen tạo ra tương ứng với etylen có thể được tăng, và tuổi thọ của chất xúc tác còn có thể được kéo dài.

Danh sách tài liệu trích dẫn

Tài liệu sáng chế

Tài liệu sáng chế 1: JP 2014-24005 A

Tài liệu sáng chế 2: JP 2014-24006 A

Tài liệu sáng chế 3: JP 2014-24007 A

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Vấn đề kỹ thuật

Bằng cách này, trong ứng dụng thực tế của việc sản xuất olefin bậc thấp bằng cách sử dụng chất xúc tác zeolit, có một mong muốn rằng hệ thống tầng cố định có chi phí thiết bị thấp hơn so với hệ thống tầng sôi được sử dụng. Trong trường hợp này, được ưu tiên là olefin bậc thấp có thể được sản xuất ổn định và liên tục trong một khoảng thời gian dài bằng cách sử dụng chất xúc tác zeolit được sử dụng không thay đổi, và có một yêu cầu là chất xúc tác zeolit còn phải có tuổi thọ lâu dài.

Trong bản mô tả này, có một nhân tố làm rút ngắn tuổi thọ của chất xúc

tác zeolit, làm che lấp các lỗ trống đi kèm với sự lắng đọng cacbon, đó là, sự tạo thành than cốc (than cốc) có thể được đề cập đến. Trong sự tạo thành than cốc, hydrocacbon thơm được tạo ra như một sản phẩm phụ bởi hoạt động xúc tác của chất xúc tác zeolit là một nhân tố lớn. Trong bản mô tả này, chất xúc tác zeolit có điểm axit là axit đặc, và tại điểm axit này phân tử hydrocacbon mà là nguyên liệu bị phân hủy và còn bị khử hydro để tạo ra olefin bậc thấp, tuy nhiên, khi olefin được tạo ra vẫn còn ở điểm axit mà không rời khỏi điểm axit này, thì phản ứng còn tiến hành hoạt động xúc tác, và hydrocacbon thơm được tạo ra bằng phản ứng tạo vòng và phản ứng khử hydro. Than cốc được tạo ra từ hydrocacbon thơm, và hoạt tính xúc tác của chất xúc tác zeolit bị giảm như được mô tả ở trên.

Sáng chế được thực hiện theo quan điểm tình trạng kỹ thuật nêu trên, và mục đích của sáng chế là đề xuất chất xúc tác hỗn hợp có khả năng kéo dài tuổi thọ của chất xúc tác trong việc sản xuất olefin bậc thấp bằng cách sử dụng chất xúc tác zeolit, phương pháp sản xuất chất xúc tác hỗn hợp, phương pháp sản xuất olefin bậc thấp bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp, và phương pháp tái chế chất xúc tác hỗn hợp trong phương pháp sản xuất olefin bậc thấp.

Cách thức giải quyết vấn đề

Để đạt được mục đích của sáng chế, thì chất xúc tác hỗn hợp của sáng chế là chất xúc tác hỗn hợp dùng để sản xuất olefin bậc thấp từ nguyên liệu hydrocacbon, bao gồm:

zeolit là nhôm silicat kết tinh chứa gali và sắt hoặc sắt và còn có khung cấu tạo gồm vòng 8 đến 12 phần tử; và silic dioxit.

Theo như cấu tạo này, trong chất xúc tác hỗn hợp bao gồm zeolit mà là nhôm silicat kết tinh chứa sắt hoặc sắt và gali, và silic dioxit, bằng cách tạo ra zeolit có hoạt tính xúc tác, và silic dioxit làm chất kết dính (chất kết dính) trong

hỗn hợp, thì lượng than cốc tạo ra được làm giảm bằng cách ngăn chặn việc tạo ra hydrocacbon thơm trong suốt quá trình ngăn chặn sự giảm sản lượng etylen và propylen, kết quả là tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp có thể được kéo dài.

Ngoài ra, trong tài liệu sáng chế từ 1 đến 3, oxit nhôm (bột nhôm) được sử dụng làm chất kết dính. Tuy nhiên, các tác giả đã tìm ra rằng tuổi thọ của chất xúc tác đường như được kéo dài bằng cách sử dụng silic dioxit (oxit silic) làm chất kết dính. Đó là, các tác giả đã tìm ra rằng tuổi thọ của chất xúc tác có thể được kéo dài bằng cách trộn silic dioxit với zeolit như được mô tả ở trên. Điều này có thể được coi là do ảnh hưởng của silic dioxit mà cùng tồn tại trong ít nhất một phần của điểm axit tồn tại trên bề mặt bên ngoài của zeolit, ví dụ, việc tạo ra hydrocacbon thơm từ olefin bậc thấp được ngăn chặn trên bề mặt bên ngoài của zeolit bởi sự giảm độ bền axit tại điểm axit, và việc tạo ra than cốc bị ức chế. Do đó, olefin bậc thấp có thể được sản xuất đầy đủ và hiệu quả trong một khoảng thời gian dài, và việc sản xuất olefin bậc thấp từ nguyên liệu hydrocacbon có thể được thực hiện bằng hệ thống tầng cố định.

Theo cấu tạo trên của sáng chế, được ưu tiên là:

zeolit là nhôm silicat kết tinh chứa sắt và gali, và

mật độ axit đối với tỷ lệ thành phần số mol của silic so với tổng số mol của sắt, gali, và nhôm là từ 75,0 đến 200,0, tỷ lệ thành phần số mol của gali so với tổng số mol của sắt, gali, và nhôm là 0,1 đến 0,4, và tỷ lệ thành phần số mol của sắt so với tổng số mol của sắt, gali, và nhôm là 0,2 đến 0,6.

Theo cấu tạo này, bằng cách thiết lập từng mật độ axit, tỷ lệ thành phần mol của sắt (Fe), và tỷ lệ thành phần mol của gali (Ga) nằm trong phạm vi được mô tả ở trên, thì lượng propylen tạo ra tương ứng với etylen có thể còn được tăng, và việc tạo ra hydrocacbon thơm có thể còn bị ngăn chặn dưới sự cùng tồn tại của silic dioxit mà là chất kết dính. Trong bản mô tả này, trong sắt, có chức

năng ngăn chặn độ bền axit tại điểm axit của zeolit, và trong gali, có chức năng thúc đẩy phản ứng khử hydro của ankan.

Ngoài ra, trong cấu tạo được mô tả ở trên của sáng chế, được ưu tiên là:

zeolit là nhôm silicat kết tinh chứa sắt, và

mật độ axit là tỷ lệ thành phần số mol của silic so với tổng số mol của sắt, và nhôm là từ 75,0 đến 200,0, và tỷ lệ thành phần số mol của sắt so với tổng số mol của sắt, và nhôm là từ 0,4 đến 0,7.

Theo cấu tạo này, bằng cách thiết lập từng mật độ axit, tỷ lệ thành phần mol của sắt, và tỷ lệ thành phần mol của gali nằm trong phạm vi được mô tả ở trên, lượng propylen tạo ra tương ứng với etylen có thể còn được tăng, và hiệu quả ngăn chặn của việc tạo ra hydrocacbon thơm có thể còn được tăng dưới sự cùng tồn tại của silic dioxit mà là chất kết dính.

Ngoài ra, trong cấu tạo của chất xúc tác được mô tả ở trên của sáng chế, nồng độ silic dioxit được ưu tiên nằm trong khoảng từ 5 đến 50% trọng lượng, và khoảng ưu tiên hơn là từ 5 đến 40% trọng lượng.

Theo cấu tạo này, lượng hydrocacbon thơm tạo ra có thể được làm giảm hiệu quả hơn trong suốt quá trình ngăn chặn sự giảm sản lượng propylen. Kết quả là, tuổi thọ của chức năng xúc tác trong zeolit của chất xúc tác hỗn hợp có thể được kéo dài hiệu quả hơn.

Phương pháp sản xuất chất xúc tác hỗn hợp theo sáng chế, bao gồm:

bước tổng hợp thủy nhiệt, bước đúc, và bước trao đổi ion.

Theo cấu tạo này, trong bước tổng hợp thủy nhiệt được thực hiện với sự có mặt của nước ở nhiệt độ cao và áp suất cao, thành phần zeolit trong chất xúc tác hỗn hợp của sáng chế, mà là nhôm silicat kết tinh chứa sắt hoặc sắt và gali, được tổng hợp từ, đối với nguyên liệu, nguồn oxit silic, nguồn oxit nhôm, nguồn

sắt hoặc nguồn sắt và nguồn gali, chất khoáng hóa, và nước.

Ngoài ra, trong bước đúc, silic dioxit là chất kết dính được bổ sung vào trong zeolit được tổng hợp trong bước tổng hợp thủy nhiệt, và hỗn hợp thu được được nhào, định hình, làm khô, đốt nóng và xử lý tương tự để tạo ra chất xúc tác hỗn hợp trong hình dạng nhất định. Bằng cách sử dụng silic dioxit làm chất kết dính tại thời điểm này, việc tạo ra hydrocacbon thơm có thể được ngăn chặn như được mô tả ở trên. Ngoài ra, trong bước trao đổi ion, bằng cách đưa vào nhóm OH có tính axit, thì zeolit được phép thể hiện đặc tính như axit đặc.

Ngoài ra, đối với trình tự các bước thực hiện sản xuất chất xúc tác hỗn hợp, ví dụ, bước đúc có thể được thực hiện sau bước trao đổi ion, nhưng việc sản xuất được ưu tiên được thực hiện theo thứ tự là bước tổng hợp thủy nhiệt, bước đúc, và bước trao đổi ion. Khả năng làm việc được cải thiện trong việc thực hiện bước trao đổi ion để chất xúc tác hỗn hợp được đúc thành hình dạng nhất định hơn là trong việc thực hiện bước trao đổi ion để zeolit bột được tạo ra bước tổng hợp thủy nhiệt. Ngoài ra, khi chất xúc tác hỗn hợp được đúc bằng cách sử dụng silic dioxit làm chất kết dính, và sau đó điểm axit được phép thể hiện bởi bước trao đổi ion, có khả năng là việc tạo ra hydrocacbon thơm có thể được ngăn chặn.

Theo cấu tạo được mô tả ở trên của sáng chế, trong bước đúc được mô tả ở trên, ưu tiên sử dụng dung dịch nước kiềm chứa tinh bột làm chất hỗ trợ đúc trong việc đúc hỗn hợp của zeolit và silic dioxit.

Theo cấu tạo này, trong bước đúc, đặc tính làm dày được tạo ra bằng cách bổ sung dung dịch nước kiềm mà chứa tinh bột khi zeolit và silic dioxit được nhào, thì hỗn hợp ở trạng thái thô được tạo ra một cách dễ dàng.

Phương pháp sản xuất olefin bậc thấp, trong đó olefin bậc thấp được sản xuất từ nguyên liệu hydrocacbon bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp theo

cấu tạo được mô tả ở trên của sáng chế, thì phương pháp được đặc trưng bởi khí là lớn hơn hoặc bằng 15% trọng lượng, và khoảng ưu tiên hơn là từ lớn hơn hoặc bằng 50% trọng lượng của nguyên liệu hydrocacbon được cung cấp cho chất xúc tác hỗn hợp, và phản ứng của việc sản xuất olefin bậc thấp từ nguyên liệu hydrocacbon được phép tiến hành trong phạm vi nhiệt độ từ 530°C đến 650°C, và khoảng nhiệt độ được ưu tiên hơn là từ 550°C đến 640°C.

Theo cấu tạo này, so với bước crackinh bằng hơi nước, nhiệt độ phản ứng là thấp, hiệu quả sử dụng năng lượng là tuyệt vời, và chi phí có thể được làm giảm. Ngoài ra, bằng cách sản xuất olefin bậc thấp ở nhiệt độ tương đối thấp, việc tạo ra hydrocacbon thơm được ngăn chặn, và tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp có thể được kéo dài.

Ngoài ra, phản ứng có thể được thực hiện trong khi điều chỉnh nhiệt độ nằm trong khoảng từ 530°C đến 650°C. Theo sáng chế, chất xúc tác hỗn hợp có thể được sử dụng trong một khoảng thời gian dài, nhưng sản lượng olefin bậc thấp bị giảm dần do sự suy thoái của chất xúc tác theo thời gian. Do đó, ví dụ, bằng cách làm gia tăng dần nhiệt độ phản ứng theo thời gian, thì sản lượng olefin bậc thấp có thể được ổn định trong một khoảng thời gian dài, và thời gian thay thế và thời gian tái chế của chất xúc tác hỗn hợp có thể được trì hoãn.

Ngoài ra, phương pháp sản xuất olefin bậc thấp, trong đó olefin bậc thấp được sản xuất từ nguyên liệu hydrocacbon bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp theo cấu tạo được mô tả ở trên của sáng chế, và trong đó khí chứa lớn hơn hoặc bằng 15% trọng lượng, và khoảng ưu tiên hơn là từ lớn hơn hoặc bằng 50% trọng lượng của nguyên liệu hydrocacbon được cung cấp cho chất xúc tác hỗn hợp, và thời gian tiếp xúc của nguyên liệu hydrocacbon với chất xúc tác hỗn hợp được ưu tiên nằm trong khoảng từ 0,08 đến 1,0 giờ, và khoảng ưu tiên hơn là từ 0,08 đến 0,4 giờ.

Theo cấu tạo này, bằng cách thiết lập thời gian tiếp xúc của nguyên liệu hydrocacbon với chất xúc tác hỗn hợp nằm trong khoảng từ 0,08 đến 1,0 giờ, và khoảng ưu tiên hơn là từ 0,08 đến 0,4 giờ, olefin bậc thấp có thể được sản xuất một cách hiệu quả hơn, và lượng hydrocacbon thơm tạo ra còn được ngăn chặn và tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp có thể được kéo dài. Do đó, khi thời gian tiếp xúc bắt đầu ngắn lại, thì sản lượng olefin bậc thấp bị giảm và lượng hydrocacbon thơm tạo ra cũng bị giảm, và tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp trở nên dài hơn, và khi thời gian tiếp xúc trở nên dài hơn, thì sản lượng olefin bậc thấp được tăng lên và lượng hydrocacbon thơm tạo ra cũng được tăng lên, và tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp trở nên ngắn lại. Do đó, được ưu tiên là thời gian tiếp xúc được thiết lập bằng cách xem xét sản lượng olefin bậc thấp và tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp.

Ngoài ra, theo sáng chế, chất xúc tác hỗn hợp có thể được sử dụng trong một khoảng thời gian dài, nhưng sản lượng olefin bậc thấp được giảm dần do sự suy thoái của chất xúc tác theo thời gian. Do đó, ví dụ, bằng cách làm gia tăng dần thời gian tiếp xúc của nguyên liệu với chất xúc tác hỗn hợp theo thời gian, thì sản lượng olefin bậc thấp có thể được ổn định trong một khoảng thời gian dài, và thời gian thay thế và thời gian tái chế của chất xúc tác hỗn hợp có thể được trì hoãn.

Phương pháp tái chế chất xúc tác hỗn hợp, trong đó cacbon lắng đọng được đốt và loại bỏ khỏi chất xúc tác hỗn hợp được sử dụng trong phương pháp sản xuất olefin bậc thấp theo cấu tạo được mô tả ở trên của sáng chế, phương pháp được đặc trưng bởi không khí hòa loãng với khí trơ được cung cấp cho chất xúc tác hỗn hợp, và cacbon lắng đọng được đốt và loại bỏ ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 450°C đến 600°C, và khoảng ưu tiên hơn là từ 500°C đến 550°C.

Theo cấu tạo này, chất xúc tác hỗn hợp có thể được sử dụng mà không

cần thay thế chất xúc tác hỗn hợp, và khoảng thời gian sử dụng chất xúc tác hỗn hợp có thể còn được kéo dài, do đó, việc làm giảm chi phí có thể đạt được. Ngoài ra, nhiệt độ để đốt và loại bỏ cacbon lắng đọng là thấp hơn nhiệt độ phản ứng tại thời điểm sản xuất olefin bậc thấp hoặc bằng mức độ của nhiệt độ phản ứng, do đó, nhiệt độ là nhiệt độ có thể sử dụng được trong một cơ sở sản xuất olefin bậc thấp mà không gây ra bất kỳ vấn đề nào, do đó sự cải thiện độ chịu nhiệt, việc nâng cấp thiết bị gia nhiệt, và tương tự là không cần thiết đối với sự tái chế, và sự tái chế có thể được thực hiện mà không làm gia tăng chi phí thiết bị.

Hiệu quả của sáng chế

Theo sáng chế, bằng cách trộn silic dioxit làm chất kết dính trong zeolit mà là nhôm silicat kết tinh chứa sắt hoặc sắt và gali, và bằng cách đúc hỗn hợp thu được thành hình dạng, sự suy yếu chức năng xúc tác của zeolit được ngăn chặn và tuổi thọ của chất xúc tác có thể được kéo dài trong việc sản xuất olefin bậc thấp bằng cách chất xúc tác.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Fig.1 là hình vẽ giải thích thành phần của mỗi chất xúc tác hỗn hợp của các ví dụ 1 và 2, và ví dụ so sánh 1 trong sáng chế.

Fig.2 là hình vẽ giải thích sự so sánh hiệu suất của mỗi chất xúc tác hỗn hợp của các ví dụ 1 và 2, và ví dụ so sánh 1.

Fig.3 là hình vẽ giải thích thành phần có hàm lượng silic dioxit khác nhau trong mỗi chất xúc tác hỗn hợp của các ví dụ 1, 3, và 4.

Fig.4 là hình vẽ giải thích sự so sánh hiệu suất của mỗi chất xúc tác hỗn hợp của các ví dụ 1, 3, và 4.

Fig.5 là là biểu đồ thể hiện sự thay đổi theo thời gian của sản lượng olefin bậc thấp trong thử nghiệm phản ứng bằng cách sử dụng từng chất xúc tác

hỗn hợp của các ví dụ 1 và 4, và ví dụ so sánh 1.

Fig.6 là hình vẽ thể hiện mối quan hệ giữa thời gian tiếp xúc và hiệu suất ban đầu của chất xúc tác hỗn hợp trong các ví dụ 4, 5, và 6, và ví dụ so sánh 3 như thử nghiệm phản ứng trong đó thời gian tiếp xúc của nguyên liệu với chất xúc tác hỗn hợp là khác nhau bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp tương tự như trong ví dụ 4.

Fig.7 là hình vẽ thể hiện mối quan hệ giữa nhiệt độ phản ứng và hiệu suất ban đầu của chất xúc tác hỗn hợp trong mỗi ví dụ 5, 7, và 8, như thử nghiệm phản ứng trong đó nhiệt độ phản ứng là khác nhau bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp tương tự như trong ví dụ 4.

Fig.8 là biểu đồ thể hiện kết quả của thử nghiệm phản ứng dài hạn như ví dụ 9 bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp tương tự như trong ví dụ 4.

Fig.9 là biểu đồ thể hiện kết quả của thử nghiệm phản ứng dài hạn như ví dụ 9.

Fig.10 là biểu đồ thể hiện các kết quả của thử nghiệm tái chế của chất xúc tác hỗn hợp như ví dụ 10.

Mô tả chi tiết sáng chế

Phương án của sáng chế sẽ được mô tả như dưới đây:

Theo phương án này, chất xúc tác hỗn hợp để sản xuất hiệu quả olefin bậc thấp như propylen trong một khoảng thời gian dài, phương pháp sản xuất chất xúc tác hỗn hợp, phương pháp sản xuất olefin bậc thấp bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp, và phương pháp tái chế chất xúc tác hỗn hợp trong phương pháp sản xuất olefin bậc thấp sẽ được mô tả.

Chất xúc tác hỗn hợp theo phương án này bao gồm zeolit mà là nhôm silicat kết tinh chứa gali và sắt hoặc sắt và còn có khung cấu tạo gồm vòng 8 đến

12 phần tử, và silic dioxit có chức năng làm chất kết dính cho việc đúc.

Trong bản mô tả này, zeolit mà là nhôm silicat kết tinh và còn có khung cấu tạo gồm vòng 8 đến 12 phần tử. Cấu trúc khung cấu tạo của zeolit được lưu trữ trong cơ sở dữ liệu của International Zeolit Association, và được cấp mã cấu trúc gồm ba chữ cái trong bảng chữ cái. Mã cấu trúc này chỉ mô tả cấu trúc hình học của khung cấu tạo.

Ví dụ, LTA hoặc tương tự là mã cấu trúc của khung cấu tạo có vòng 8 phần tử, FER, MWW, MFI hoặc tương tự là mã cấu trúc của khung cấu tạo có vòng 10 phần tử, và MOR, LTL, FAU, BEA hoặc tương tự là mã cấu trúc của khung cấu tạo có vòng 12 phần tử. Ngoài ra, trong bản mô tả này, chỉ một số mã cấu trúc của zeolit mà từng vòng tạo thành nó được chỉ định. Đường kính lỗ trống của zeolit bị ảnh hưởng bởi số lượng vòng của khung cấu tạo, và đường kính lỗ trống được coi là gồm vòng 8 đến 12 phần tử. Ví dụ, trong toàn bộ zeolit, đường kính lỗ trống nằm trong khoảng từ 0,2 đến 1,0nm, và trong trường hợp zeolit có khung cấu tạo gồm vòng 8 đến 12 phần tử, thì đường kính lỗ trống nằm trong khoảng từ 0,40nm đến 0,75nm. Trong phương pháp thực hiện sáng chế, đối với kích thước lỗ trống của zeolit, thì zeolit mà được sử dụng một cách phù hợp khi propylen (etylen) được sản xuất bằng cách sử dụng chức năng xúc tác của zeolit bằng cách sử dụng, ví dụ, ưu tiên sử dụng olefin bậc thấp C4 đến C8 làm nguyên liệu hydrocacbon, và ví dụ, kích thước lỗ trống ưu tiên nằm trong khoảng từ 0,40nm đến 0,75nm như được mô tả ở trên, nhưng kích thước không bị giới hạn trong phạm vi này.

Trong trường hợp này, số lượng vòng của khung cấu tạo của zeolit được ưu tiên nằm trong khoảng từ 8 đến 12 như được mô tả ở trên, và số lượng vòng nằm khoảng ưu tiên hơn là từ 10 đến 12. Ngoài ra, ví dụ, đã biết đến zeolit loại MFI có khung cấu tạo gồm vòng 10 phần tử, ZSM-5 (Zeolit Socony Mobil-5), và zeolit loại BEA có khung cấu tạo gồm vòng 12 phần tử, zeolit loại beta. Như

được mô tả ở trên, đối với zeolit của phương án thực hiện sáng chế, zeolit loại MFI hoặc zeolit loại beta có thể được sử dụng một cách phù hợp làm zeolit vòng 8 đến 12 phần tử. Đặc biệt là, zeolit loại MFI có thể được sử dụng một cách phù hợp.

Ngoài ra, trong phương pháp thực hiện sáng chế, đối với zeolit, ví dụ, nhôm silicat kết tinh chứa nguyên tố sắt (Fe) và nguyên tố gali (Ga) hoặc nguyên tố sắt được sử dụng. Ngoài ra, Fe có chức năng ngăn chặn độ bền axit tại điểm axit của zeolit. Hơn nữa, Ga có chức năng thúc đẩy phản ứng khử hydro của ankan. Chất xúc tác zeolit của phương án thực hiện sáng chế là chất xúc tác hỗn hợp được tạo ra bằng cách đúc có sự bổ sung chất kết dính (chất kết dính) và đốt cháy, và silic dioxit được sử dụng làm chất kết dính.

Trong zeolit mà là nhôm silicat kết tinh loại MFI chứa nguyên tố sắt (không chứa bất kỳ nguyên tố gali nào), tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của nguyên tố sắt ($\text{nguyên tố sắt} / (\text{nguyên tố sắt} + \text{nguyên tố nhôm (Al)})$) được ưu tiên nằm trong khoảng từ 0,4 đến 0,7, và khoảng ưu tiên hơn là từ 0,4 đến 0,6.

Ngoài ra, trong zeolit mà là nhôm silicat kết tinh loại MFI chứa nguyên tố sắt (không chứa bất kỳ nguyên tố gali nào), mật độ axit ($\text{nguyên tố silic (Si)} / (\text{nguyên tố sắt} + \text{nguyên tố nhôm})$ tỷ lệ nguyên tử) được ưu tiên nằm trong khoảng từ 75,0 đến 200,0, và khoảng ưu tiên hơn là từ 80,0 đến 200,0. Ngoài ra, tỷ lệ nguyên tử có nghĩa là tỷ lệ thành phần bằng số mol của mỗi nguyên tố được mô tả ở trên.

Ngoài ra, trong zeolit mà là nhôm silicat kết tinh loại MFI chứa nguyên tố sắt và nguyên tố gali, tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của nguyên tố sắt ($\text{nguyên tố sắt} / (\text{nguyên tố sắt} + \text{nguyên tố gali} + \text{nguyên tố nhôm})$) được ưu tiên nằm trong khoảng từ 0,2 đến 0,6, và khoảng ưu tiên hơn là từ 0,3 đến 0,5.

Ngoài ra, trong zeolit mà là nhôm silicat kết tinh loại MFI chứa nguyên

tổ sắt và nguyên tố gali, tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của nguyên tố gali (nguyên tố gali/(nguyên tố sắt + nguyên tố gali + nguyên tố nhôm)) được ưu tiên nằm trong khoảng từ 0,1 đến 0,4, và khoảng ưu tiên hơn là từ 0,2 đến 0,4.

Ngoài ra, trong chất xúc tác zeolit loại MFI chứa nguyên tố sắt và nguyên tố gali, mật độ axit (nguyên tố silic/(nguyên tố sắt + nguyên tố gali + nguyên tố nhôm) tỷ lệ nguyên tử) được ưu tiên nằm trong khoảng từ 75,0 đến 200,0, và khoảng ưu tiên hơn là từ 80,0 đến 200,0.

Như được mô tả ở trên, bằng cách sử dụng zeolit của phương án này, mà là nhôm silicat kết tinh loại MFI chứa nguyên tố sắt, độ bền axit có thể được điều chỉnh từ hàm lượng của nguyên tố sắt và mật độ axit, và ngoài ra, bằng việc bổ sung nguyên tố gali, sự thúc đẩy hoạt động khử hydro của ankan có thể được cải thiện. Tại điểm axit của zeolit, alkan được chia ra, và liên kết đôi cacbon còn được tạo ra bởi phản ứng khử hydro, và olefin bậc thấp được tạo ra, nhưng ví dụ, khi độ bền axit tại điểm axit là cực kỳ lớn, thì phản ứng còn tiến hành thậm chí sau khi olefin bậc thấp được sản xuất mà không có olefin bậc thấp rời khỏi điểm axit, và hydrocacbon thơm được tạo ra bằng phản ứng tạo vòng và phản ứng khử hydro. Đối với lượng hydrocacbon thơm tạo ra được tăng lên, sự lắng đọng của lượng than cốc được tăng lên, và là kết quả mà trong đó tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp bị rút ngắn. Do đó, trong việc giảm sự lắng đọng của lượng than cốc, việc điều chỉnh độ bền axit là quan trọng.

Bằng cách thiết lập tỷ lệ thành phần số mol của nguyên tố sắt, tỷ lệ thành phần số mol của nguyên tố gali, và mật độ axit nằm trong phạm vi được mô tả ở trên, sản lượng propylen có thể được cải thiện, và việc tạo ra cacbon thơm, mà gây ra sự tạo thành than cốc còn có thể được ngăn chặn.

Ngoài ra, hàm lượng silic dioxit (oxit silic) làm chất kết dính trong chất xúc tác hỗn hợp tương ứng với chất xúc tác hỗn hợp được ưu tiên nằm trong

khoảng từ 5 đến 50% trọng lượng (% theo trọng lượng), và khoảng ưu tiên hơn là từ 5 đến 40% trọng lượng. Trong sự tăng sản lượng olefin bậc thấp, ưu tiên làm giảm hàm lượng silic dioxit và làm gia tăng hàm lượng zeolit, và trong việc ngăn chặn việc tạo ra hydrocacbon thơm, ưu tiên làm gia tăng hàm lượng silic dioxit. Ngoài ra, đây được coi như là hoạt động làm che phủ và bất hoạt điểm axit trên bề mặt bên ngoài của zeolit trong silic dioxit làm chất kết dính là mạnh hơn trong oxit nhôm (oxit nhôm) làm chất kết dính.

Do đó, bằng cách che phủ và bất hoạt điểm axit trên bề mặt bên ngoài của zeolit, việc tạo ra hydrocacbon thơm tại điểm axit trên bề mặt bên ngoài của zeolit được ngăn chặn, và sự lắng đọng cacbon trên bề mặt bên ngoài của zeolit còn được ngăn chặn, và có mong muốn rằng hoạt tính xúc tác để chuyển đổi ankan thành olefin bậc thấp bên trong các lỗ trống của zeolit có thể được duy trì trong một khoảng thời gian dài. Cơ chế hoạt động này hoạt động hiệu quả trên zeolit mà có hoạt động xúc tác xác định với phản ứng của việc sản xuất olefin bậc thấp từ ankan, ví dụ, zeolit mà là nhôm silicat kết tinh chứa gali và sắt hoặc sắt và còn có khung cấu tạo gồm vòng 8 đến 12 phần tử, và còn có chức năng làm chất xúc tác dùng để sản xuất olefin bậc thấp từ nguyên liệu hydrocacbon.

Zeolit là chất xúc tác axit đặc (chất xúc tác zeolit) được sản xuất thông qua quy trình được phân làm ba bước: 1. Bước tổng hợp thủy nhiệt, 2. Bước đúc, và 3. Bước trao đổi ion.

1. Bước tổng hợp thủy nhiệt

“Phương pháp tổng hợp thủy nhiệt” là một thuật ngữ dùng chung cho phương pháp tổng hợp một chất, mà được thực hiện với sự có mặt của nước ở nhiệt độ cao và áp suất cao, và nhiều zeolit là nhôm silicat kết tinh được tổng hợp bằng phương pháp tổng hợp thủy nhiệt này. Đối với nguyên liệu được sử dụng cho sự tổng hợp, thì nguồn oxit silic (như natri silicat, oxit silic dạng keo,

và oxit silic bốc hơi), nguồn oxit nhôm (như nhôm hydroxit, và natri aluminat), chất định hướng cấu trúc (như amin), chất khoáng hóa (như hydroxit của kim loại kiềm), nước, hoặc chất tương tự thường được sử dụng.

Trong zeolit của phương án này, nguồn sắt (ví dụ, sắt nitrat, sắt oxit, sắt sulfat, sắt phosphat, sắt clorua, sắt bromua, kim loại sắt (bột sắt), sắt axit hữu cơ, hoặc các chất tương tự) được bổ sung vào nguyên liệu, và ngoài ra, nguồn gali (ví dụ, gali nitrat, gali oxit, gali sulfat, gali phosphat, gali clorua, gali bromua, gali hydroxit, hoặc các chất tương tự) được ưu tiên bổ sung vào nguyên liệu. Chúng được trộn, và hydrogel vô định hình (gel mẹ) có khả năng phản ứng cao được pha chế và đổ đầy vào nồi hấp mà là một lò phản ứng chịu áp lực, và sau đó hydrogel vô định hình được gia nhiệt ở gần 150°C trong một khoảng thời gian nhất định để tổng hợp zeolit. Sau phản ứng tổng hợp thủy nhiệt, zeolit bột được tạo ra thông qua các bước tách sản phẩm, rửa bằng nước, làm khô, đốt cháy (được thực hiện để phân hủy và loại bỏ chất định hướng cấu trúc) và các chất tương tự.

Phương pháp sản xuất zeolit được mô tả chi tiết hơn như dưới đây. Gel lỏng mẹ A bao gồm oxit silic dạng keo có kích thước hạt từ 8 đến 11nm là oxit silic nhỏ mà là nguồn silic và natri hydroxit (NaOH) cho sự điều chỉnh pH, và gel lỏng mẹ B chứa $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ là nguồn nhôm, $\text{Ga}(\text{NO}_3)_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ là nguồn gali, $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ là nguồn sắt, và tetrapropylamoni bromua (TPrABr) là chất định hướng cấu trúc được pha chế. Ngoài ra, được ưu tiên là lượng TPrABr phụ gia làm chất định hướng cấu trúc được giảm đi.

Tiếp theo, gel lỏng mẹ A và gel lỏng mẹ B này được khuấy và trộn (ví dụ, trong 15 phút). Kết quả là, hydrogel vô định hình có khả năng phản ứng cao được pha chế. Sau đó, gel lỏng mẹ đã khuấy và trộn được làm lão hóa (ví dụ, tại 60°C qua đêm). Tiếp theo, trong sự tổng hợp thủy nhiệt được mô tả ở trên, gel lỏng mẹ đã làm lão hóa được khuấy ở 120°C đến 150°C với tốc độ khuấy là từ

150rpm đến 300rpm (ví dụ, thực hiện tổng hợp thủy nhiệt trong nồi hấp dưới áp suất riêng). Do đó, sự kết tinh được thực hiện dưới điều kiện nhiệt độ cao và áp suất cao. Tuy nhiên, đối với nhiệt độ phản ứng, nhiệt độ này là tương đối thấp, do đó hạt nhân được phát triển ở nhiệt độ thấp, và việc tạo ra các hạt thô được ngăn chặn. Ngoài ra, đối với tốc độ khuấy, tốc độ là tương đối cao, và hạt nhân được tạo ra với một lượng lớn. Việc khuấy được thực hiện dưới các điều kiện, ví dụ, trong 24 giờ để tạo ra các tinh thể. Các tinh thể được tạo ra được rửa sạch bằng nước, và sự khử hydro được thực hiện bằng cách ly tâm. Sau đó, các tinh thể được làm khô, ví dụ, ở 120°C trong 3 giờ, và còn được đốt cháy ở 550°C trong 3 giờ để loại bỏ TPrABr. Ngoài ra, trong trường hợp không chứa gali, nguồn gali không được bổ sung vào gel lỏng mẹ B.

2. Bước đúc

Thông thường, trong trường hợp mà ở đó zeolit được sử dụng trong công nghiệp làm chất xúc tác, theo quan điểm cải thiện các đặc tính cơ học hoặc giảm tổn thất áp suất, zeolit được sử dụng trong nhiều trường hợp được đúc thành hình dạng hình trụ hoặc hình dạng tương tự. Quy trình của sáng chế bao gồm các bước nhào zeolit chủ yếu được tổng hợp như được mô tả ở trên với silic dioxid mà là chất kết dính (chất kết dính), đúc, làm khô, đốt cháy, và xử lý tương tự. Ngoài ra, trong bước đúc, ví dụ, phương pháp ép đùn hoặc phương pháp tương tự được sử dụng.

Ví dụ, đối với zeolit bột được tạo ra thông qua bước tổng hợp thủy nhiệt (hoặc bước trao đổi ion) được mô tả ở trên, thì bột oxit silic, và tinh bột làm chất hỗ trợ đúc được trộn, và sau đó đưa vào hỗn hợp thu được, dung dịch nước natri hydroxit (dung dịch nước kiềm) được bổ sung và được nhào, và hỗn hợp trong tình trạng thô được tạo ra. Ngoài ra, đối với chất hỗ trợ đúc, không bị hạn chế là tinh bột, ví dụ, chất hỗ trợ đúc có thể được sử dụng, mà có độ nhớt tăng khi nước được bổ sung, có thể tạo ra hỗn hợp bột zeolit và bột oxit silic trong tình

trạng thô khi bột zeolit và bột oxit silic được nhào với nước, và tất cả trở thành, ví dụ, nước và cacbon dioxit trong suốt quá trình đốt cháy và biến mất khỏi khuôn đúc, và ví dụ, PVP (polyvinyl pyrolidon) hoặc các chất tương tự có thể được sử dụng.

Hỗn hợp này được xử lý thành hình dạng hình trụ, ví dụ, bằng cách ép đùn, và được làm khô ở 120°C trong khoảng 3 giờ. Tiếp theo, sản phẩm dư được đốt cháy ở 550°C trong 3 giờ dưới điều kiện có sự lưu thông không khí, và chất xúc tác hỗn hợp của phương án thực hiện sáng chế có thể được tạo ra.

Ngoài ra, bước đúc có thể được thực hiện sau bước trao đổi ion, hoặc bước trao đổi ion có thể được thực hiện sau bước đúc, và ưu tiên thực hiện bước trao đổi ion sau bước đúc.

3. Bước trao đổi ion

Trong nhiều phản ứng hóa học sử dụng zeolit làm chất xúc tác, đặc tính axit đặc được sử dụng, và đặc tính axit được phát triển bằng cách đưa nhóm OH có tính axit (vị trí axit Bronsted) vào zeolit.

Để phát triển đặc tính axit, thông thường, phản ứng trao đổi ion được áp dụng. Thông thường, zeolit được tạo ra bằng phương pháp tổng hợp thủy nhiệt gồm cation natri (Na^+) để duy trì sự cân bằng của trường điện từ, và cation natri được đưa đi trao đổi ion để được thay thế bằng proton (H^+). Ngoài ra, phương pháp mà trong đó một lần trao đổi ion được thực hiện với ion amoni (NH_4^+) bằng dung dịch NH_4NO_3 , và amoniac còn được loại bỏ bằng cách làm khô và đốt cháy để chuyển đổi để proton (H^+) có thể được sử dụng. Ví dụ, bước trao đổi ion bằng dung dịch nước amoni nitrat dưới hồi lưu sôi sau đó rửa bằng nước được lặp lại bốn lần, và sau đó thông qua việc làm khô ở 120°C trong 3 giờ và đốt cháy ở 550°C trong 3 giờ dưới điều kiện có sự lưu thông không khí, chất xúc tác hỗn hợp loại proton có thể được tạo ra.

Trong trường hợp mà ở đó bước trao đổi ion được thực hiện sau bước đúc, trong quá trình sản xuất olefin bậc thấp bằng cách sử dụng chất xúc tác zeolit, có khả năng là việc tạo ra hydrocacbon thơm mà gây ra sự tạo thành than cốc có thể được ngăn chặn. Ngoài ra, so với bột nhôm silicate kết tinh của bước tổng hợp thủy nhiệt, chất xúc tác zeolit được đúc sau bước đúc được xử lý dễ dàng hơn, và khả năng làm việc có thể được cải thiện trong bước trao đổi ion.

Trong phương pháp sản xuất mà trong đó bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp này, olefin bậc thấp được sản xuất từ, ví dụ, naphta nhẹ, khí nguyên liệu như naphta nhẹ hoặc nguyên liệu tương tự được cung cấp cho lò phản ứng mà không bị pha loãng với khí trơ như nitơ hoặc chất pha loãng như hơi nước. Do đó, phản ứng được thực hiện bằng cách đưa nguyên liệu hydrocacbon tiếp xúc với chất xúc tác hỗn hợp. Ngoài ra, chất pha loãng có thể còn được chứa trong khí nguyên liệu, và trong trường hợp này, trong khí được cung cấp cho chất xúc tác hỗn hợp, nguyên liệu hydrocacbon như naphta nhẹ được ưu tiên sử dụng với lượng lớn hơn hoặc bằng 15% trọng lượng, và khoảng ưu tiên hơn là lượng lớn hơn hoặc bằng 50% trọng lượng. Phương pháp mà trong đó chất xúc tác hỗn hợp nêu trên được thay thế trong lò phản ứng là tầng cố định, và khí nguyên liệu được cung cấp vào trong lò phản ứng được phép đi qua trong khi được đưa đi tiếp xúc với chất xúc tác hỗn hợp được sử dụng. Trong trường hợp này, phản ứng được phép tiến hành trong một phạm vi nhiệt độ vừa từ 530°C đến 650°C, và khoảng ưu tiên hơn là từ 550°C đến 640°C, và etylen và propylen được tạo ra.

Ngoài ra, nguyên liệu hydrocacbon của olefin bậc thấp là, ví dụ, nguyên liệu hydrocacbon có nhiệt độ sôi thấp như naphta nhẹ, và naphta (tất cả các loại naphta) có nghĩa là sản phẩm có nhiệt độ sôi nằm trong khoảng gần 30 đến 200°C trong số các sản phẩm được tạo ra bằng cách chưng cất dầu thô bằng máy chưng cất trong không khí. Đối với naphta, naphta có điểm sôi nằm trong

khoảng từ 30 đến 100°C được ưu tiên hơn so với naphta nhẹ, và naphta có điểm sôi nằm trong khoảng từ 100 đến 200°C được ưu tiên hơn so với naphta nặng. Ngoài ra, naphta nhẹ tương ứng với các phần nhỏ mà chứa pentan có 5 nguyên tử cacbon và hexan có 6 nguyên tử cacbon là những thành phần chủ yếu.

Ngoài ra, nguyên liệu hydrocacbon có nhiệt độ sôi thấp về cơ bản là naphta nhẹ, nhưng có thể chứa, ví dụ, một phần là naphta nặng, hoặc có thể toàn bộ là naphta. Ngoài ra, nguyên liệu hydrocacbon có nhiệt độ sôi thấp có thể cũng là vật liệu khác ngoài naphta, và là, ví dụ, khí tự nhiên khác ngoài dầu, hoặc các nguyên liệu hydrocacbon khác, về cơ bản là một phần tương đương với naphta nhẹ có thể được sử dụng. Hơn nữa, sản phẩm phụ hoặc tương tự tại thời điểm sản xuất nhiều loại sản phẩm khác từ dầu hoặc khí tự nhiên có thể cũng được sử dụng làm nguyên liệu hydrocacbon, hydrocacbon về cơ bản là có điểm sôi không quá cao có thể được sử dụng đối với nguyên liệu. Hơn nữa, trong phương pháp thực hiện sáng chế, có thể có trường hợp mà ở đó olefin bậc thấp được coi là olefin có ít nguyên tử cacbon, ví dụ, etylen, propylen, buten, hoặc olefin có nhiều nguyên tử cacbon hơn của buten (ví dụ, 5 đến 8 nguyên tử cacbon hoặc tương tự), nhưng trong bản mô tả này, olefin bậc thấp bao gồm ít nhất là etylen có 2 nguyên tử cacbon, và propylen có 3 nguyên tử cacbon.

Ngoài ra, trong phản ứng tạo ra olefin bậc thấp, thời gian tiếp xúc tỷ lệ nghịch với vận tốc không gian của chất lỏng tính theo giờ (LHSV) của nguyên liệu hydrocacbon trong chất xúc tác hỗn hợp của phương án thực hiện sáng chế được ưu tiên nằm trong khoảng được thiết lập từ 0,08 đến 1,0 giờ, và khoảng ưu tiên hơn là từ 0,08 đến 0,4 giờ. LHSV được ưu tiên nằm trong khoảng được thiết lập từ 1,0 đến 12,5 giờ⁻¹, và khoảng ưu tiên hơn là từ 2,5 đến 12,5 giờ⁻¹. Trong bản mô tả này, thuật ngữ “LHSV” được ưu tiên sử dụng hơn so với tốc độ tại thời điểm cung cấp nguyên liệu hydrocacbon là chất lỏng cho chất xúc tác hỗn hợp, và thuật ngữ “thời gian tiếp xúc” được ưu tiên hơn so với thời gian khi

nguyên liệu hydrocacbon đi qua chất xúc tác hỗn hợp (như được mô tả ở trên, nguyên liệu ở trạng thái khí từ trạng thái lỏng khi nguyên liệu được cung cấp cho chất xúc tác hỗn hợp, nhưng trong bản mô tả này, vận tốc không gian của nguyên liệu trong trạng thái lỏng trước khi sự khí hóa được cung cấp cho mạch phản ứng được sử dụng). Ngoài ra, đối với vận tốc không gian, vận tốc không gian (GHSV) của khí nguyên liệu được sử dụng, hoặc vận tốc không gian (WHSV) của trọng lượng có thể được sử dụng.

Trong việc sản xuất olefin bậc thấp, đối với nhiệt độ phản ứng cao hơn, tốc độ chuyển đổi của nguyên liệu hydrocacbon bắt đầu cao hơn, và đối với sản lượng olefin bậc thấp bắt đầu lớn hơn, lượng hydrocacbon thơm tạo ra bắt đầu lớn hơn, do đó, nhiệt độ phản ứng được yêu cầu để được xác định bằng sự cân bằng trên hiệu quả tiết kiệm năng lượng tại thời điểm gia nhiệt, sản lượng olefin bậc thấp, và tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp bởi sự tăng hydrocacbon thơm. Bằng cách thiết lập đến phạm vi được mô tả ở trên, tuổi thọ lâu của chất xúc tác hỗn hợp được đảm bảo, và việc sản xuất một cách ổn định olefin bậc thấp còn có thể được đảm bảo.

Ngoài ra, trong việc sản xuất olefin bậc thấp, đối với thời gian tiếp xúc là lâu hơn, tốc độ chuyển đổi của nguyên liệu hydrocacbon bắt đầu cao hơn, và sản lượng olefin bậc thấp bắt đầu lớn hơn, lượng hydrocacbon thơm tạo ra bắt đầu lớn hơn, do đó, thời gian tiếp xúc được yêu cầu để được xác định bằng sự cân bằng giữa sản lượng olefin bậc thấp, và tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp bằng cách làm gia tăng hydrocacbon thơm. Bằng cách thiết lập đến phạm vi được mô tả ở trên, tuổi thọ lâu của chất xúc tác hỗn hợp được đảm bảo, và ngoài ra việc sản xuất một cách ổn định olefin bậc thấp có thể được đảm bảo.

Trong bản mô tả này, trong trường hợp mà ở đó chất xúc tác hỗn hợp của phương án thực hiện sáng chế được sử dụng liên tục, lượng hydrocacbon thơm tạo ra trở nên nhỏ hơn so với thông thường, và kết quả là lượng cacbon lắng

động cũng trở nên nhỏ hơn, do đó, tuổi thọ của chất xúc tác hỗn hợp được kéo dài. Trong việc sản xuất olefin bậc thấp trong thời gian dài, ví dụ, trong trường hợp mà ở đó sản lượng olefin bậc thấp bị giảm tới khi giá trị thiết lập đến giới hạn nhỏ nhất, khi sự thay thế hoặc tái chế hỗn hợp được thực hiện, thì sản lượng olefin bậc thấp giảm dần theo thời gian. Do đó, tương ứng với thời gian trôi đi, bằng cách tăng nhiệt độ phản ứng, hoặc bằng cách tăng thời gian tiếp xúc (bằng cách làm giảm LHSV (vận tốc không gian)), sự giảm sản lượng olefin bậc thấp được ngăn chặn, và sản lượng olefin bậc thấp có thể được ổn định trong một khoảng thời gian dài.

Trong trường hợp này, mặc dù có khả năng là lượng hydrocacbon thơm tạo ra tăng lên do sự tăng nhiệt độ phản ứng hoặc sự giảm vận tốc không gian, lượng hydrocacbon thơm tạo ra cũng giảm theo thời gian, và xu hướng giảm của lượng hydrocacbon thơm tạo ra theo thời gian là không thay đổi lớn bởi sự tăng nhiệt độ phản ứng hoặc sự giảm vận tốc không gian, do đó, khả năng làm gia tăng hydrocacbon thơm là thấp. Ngoài ra, sự tăng nhiệt độ phản ứng theo thời gian, và sự giảm vận tốc không gian của nguyên liệu (tăng thời gian tiếp xúc) có thể được thực hiện riêng, hoặc sự tăng nhiệt độ phản ứng và sự giảm vận tốc không gian có thể được thực hiện kết hợp. Ngoài ra, trong trường hợp mà ở đó sự tăng nhiệt độ phản ứng và sự giảm vận tốc không gian được thực hiện kết hợp, sự tăng nhiệt độ phản ứng và sự giảm vận tốc không gian có thể được thực hiện tại cùng một thời điểm, hoặc có thể được thực hiện tương tự tại thời điểm khác. Ví dụ, trong việc sản xuất liên tục, trong giai đoạn đầu, sự giảm vận tốc không gian được thực hiện, và trong giai đoạn sau, sự tăng nhiệt độ phản ứng được thực hiện, hoặc sự giảm vận tốc không gian và sự tăng nhiệt độ phản ứng có thể được thực hiện ngược lại. Ngoài ra, sự tăng nhiệt độ phản ứng và sự giảm vận tốc không gian có thể được thực hiện thay thế, hoặc sự tăng nhiệt độ phản ứng và sự giảm vận tốc không gian có thể được thực hiện với tần suất khác nhau,

ví dụ, sự tăng nhiệt độ phản ứng được thực hiện ba lần và sau đó sự giảm vận tốc không gian được thực hiện một lần, hoặc tương tự.

Tiếp theo, phương pháp tái chế chất xúc tác hỗn hợp của phương án thực hiện sáng chế sẽ được mô tả. Trong phương pháp thực hiện sáng chế, ví dụ, so với trường hợp sử dụng oxit nhôm làm chất kết dính, tuổi thọ của chất xúc tác có thể được kéo dài ít nhất ba lần đến năm lần hoặc lớn hơn, và ngoài ra, như được mô tả ở trên, bằng cách điều chỉnh nhiệt độ phản ứng hoặc vận tốc không gian (thời gian tiếp xúc), tuổi thọ của chất xúc tác có thể được kéo dài mười lần hoặc lớn hơn. Tuy nhiên, ví dụ, trong trường hợp mà ở đó sản lượng olefin bậc thấp bị giảm xuống tới giá trị thiết lập, có một yêu cầu là chất xúc tác hỗn hợp được thay thế. Trong trường hợp này, trong trường hợp mà ở đó sự suy thoái của chất xúc tác hỗn hợp gây ra do việc tạo ra than cốc là chủ yếu, chất xúc tác hỗn hợp có thể được tái chế bằng cách đốt cháy và loại bỏ than cốc thành cacbon. Trong việc đốt cháy và loại bỏ than cốc, bằng cách đốt cháy than cốc thành cacbon, mà được lắng đọng bằng cách cung cấp, ví dụ, không khí pha loãng bởi nitơ như khí trơ thay cho khí nguyên liệu, than cốc có thể được loại bỏ như cacbon dioxit.

Trong trường hợp này, nhiệt độ được yêu cầu là nhiệt độ mà ở đó than cốc được đốt cháy khi bắt đầu tiếp xúc với oxygen, ví dụ, nhiệt độ của mạch phản ứng được ưu tiên nằm trong khoảng từ 450°C đến 600°C, và khoảng ưu tiên hơn là từ 500°C đến 550°C. Phạm vi nhiệt độ này trùng với phạm vi nhiệt độ phản ứng nêu trên, nhưng là phạm vi nhiệt độ thấp hơn một chút so với phạm vi nhiệt độ phản ứng, và thậm chí nếu sự tỏa nhiệt gây ra do việc đốt cháy, việc đốt cháy được ngăn chặn bằng cách pha loãng không khí với nitơ như được mô tả ở trên, và phạm vi nhiệt độ là ở mức độ phạm vi nhiệt độ mà trong đó vấn đề không xảy ra trong mạch phản ứng hoặc do chất xúc tác hỗn hợp. Sự suy thoái của chất xúc tác hỗn hợp chủ yếu gây ra do sự lắng đọng của cacbon, do đó, bằng cách đốt cháy và loại bỏ cacbon, chất xúc tác hỗn hợp có thể được tái sinh

ở trạng thái gần giống trạng thái ban đầu trước khi được sử dụng.

Trong chất xúc tác hỗn hợp của phương án thực hiện sáng chế, phương pháp sản xuất chất xúc tác hỗn hợp, và phương pháp sản xuất olefin bậc thấp, bằng cách sử dụng oxit silic làm chất kết dính mà được sử dụng để đúc zeolit bột, sự tạo thành than cốc có thể được ngăn chặn. Do đó, trong việc sản xuất olefin bậc thấp bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp, olefin bậc thấp có thể được sản xuất liên tục trong một phạm vi nhiệt độ vừa từ 530 đến 650°C (phạm vi nhiệt độ thấp trong việc sản xuất olefin bậc thấp), một cách hiệu quả, và trong một khoảng thời gian dài là 1000 giờ hoặc lớn hơn. Ngoài ra, theo phương pháp tái chế chất xúc tác hỗn hợp của phương án thực hiện sáng chế, như được mô tả ở trên, bằng cách tái chế chất xúc tác hỗn hợp được sử dụng trong một khoảng thời gian dài, chất xúc tác hỗn hợp có thể còn được sử dụng trong một khoảng thời gian dài nữa.

Ví dụ thực hiện sáng chế

Tiếp theo, các ví dụ của sáng chế sẽ được mô tả.

(Ví dụ 1)

Đầu tiên, phương pháp tổng hợp zeolit MFI loại Na (zeolit FeGaAl-MFI ($\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$)) chứa Ga và Al trong ví dụ 1 sẽ được mô tả.

Dung dịch bao gồm 58,9g oxit silic dạng keo (SiO_2 30,6% trọng lượng, Na_2O 0,4% trọng lượng, và H_2O 69,0% trọng lượng), và 1,69g natri hydroxit được pha chế thành dung dịch A, và dung dịch bao gồm 0,19g nhôm sulfat n-hydrat, 0,11g gali nitrat n-hydrat, 0,24g sắt nitrat 9-hydrat, 3,10g tetrapropylamoni bromua, và 187,8g nước tinh khiết được pha chế thành dung dịch B. Dung dịch A và dung dịch B được trộn từ từ ở nhiệt độ phòng trong khi đang khuấy, và sau đó hỗn hợp thu được được khuấy mạnh trong 15 phút trong máy trộn.

Dung dịch được trộn còn lại được để qua đêm trong khi giữ ở nhiệt độ là 60°C, và sau đó phản ứng tổng hợp thủy nhiệt được thực hiện trong nồi hấp dưới điều kiện áp suất riêng, 150°C, 72 giờ, và 300rpm. Sau khi làm mát, sản phẩm dư được rửa kỹ bằng nước tinh khiết. Sau đó, việc làm khô được thực hiện ở 120°C trong 3 giờ, và sau đó việc đốt cháy được thực hiện ở 550°C trong 3 giờ trong dòng không khí để tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là $\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$ (mật độ axit), $\text{Fe}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,4$, $\text{Ga}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$, và $\text{Al}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$ bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.1).

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 74% trọng lượng/26% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na dạng bột được tổng hợp phù hợp với các bước nêu trên, bột oxit silic (tên sản phẩm: AEROSIL 200 được sản xuất bởi Evonik Degussa GmbH (công ty trách nhiệm hữu hạn)) làm chất kết dính, và tinh bột làm chất hỗ trợ đúc được trộn vào với từng lượng nhất định, và sau đó hỗn hợp thu được được trộn trong khi bổ sung một lượng đầy đủ dung dịch nước natri hydroxit (có nồng độ NaOH là 4,5% trọng lượng) vào trong hỗn hợp để tạo ra hỗn hợp zeolit/oxit silic trong trạng thái thô. Sau đó, hỗn hợp thô thu được được xử lý đưa về hình dạng hình trụ (1,0mm ϕ) bằng máy ép đùn, và sản phẩm dư được làm khô ở 120°C trong 3 giờ và đốt cháy ở 550°C trong 3 giờ dưới điều kiện có sự lưu thông không khí, và zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic được tạo ra.

Hỗn hợp được đưa đi trao đổi ion bằng 2,2 mol/L dung dịch nước amoni nitrat dưới hồi lưu sôi và sau đó được rửa bằng nước, bước này được lặp lại bốn lần (bước trao đổi ion được thực hiện trong hai giờ mỗi lần, và 2,2 mol/L dung dịch nước amoni nitrat được thay mới mỗi lần), và sau đó hỗn hợp dư được làm

khô ở 120°C trong 3 giờ và đốt cháy ở 550°C trong 3 giờ dưới điều kiện có sự lưu thông không khí, và zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic được tạo ra. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 74% trọng lượng/26% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.1).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 74% trọng lượng/26% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, được tạo kích thước sao cho có độ dài nằm trong khoảng từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Trong thử nghiệm phản ứng, phản ứng crackinh chất xúc tác của n-hexan được thực hiện bằng lò phản ứng dòng chảy tầng cố định. Chất xúc tác có thể tích 2,0mL (1,32g là trọng lượng làm đầy) được đổ đầy vào ống phản ứng thép không gỉ (làm từ SUS316) có đường kính bên trong là 12,6mm chiều cao của lớp chất xúc tác là khoảng 20mm, và sau đó bông thủy tinh được gói trước và sau lớp chất xúc tác, và ngoài ra các hạt oxit nhôm được lấp đầy trước và sau bông thủy tinh.

Đối với các điều kiện phản ứng, dưới điều kiện phản ứng có nhiệt độ phản ứng là 565°C, tại áp suất tổng là 0,1MPa, và LHSV (vận tốc không gian của chất lỏng tính theo giờ) của n-hexan là 4,5 giờ⁻¹ (tốc độ dòng cung cấp của n-hexan là 9,0mL/giờ), phản ứng crackinh chất xúc tác của n-hexan được thực hiện trong khoảng 340 giờ. Các sản phẩm pha lỏng và pha khí được thu hồi trong khoảng 30 giờ từ khi bắt đầu phản ứng, và được đưa đi phân tích sắc ký khí, tốc độ chuyển đổi nguyên liệu (% trọng lượng) và từng sản lượng (% trọng lượng) của olefin bậc thấp (etylen và propylen) và hydrocacbon thơm được xác định, và được sử dụng làm các chỉ tiêu của hiệu quả của chất xúc tác trong giai

đoạn phản ứng ban đầu. Ngoài ra, tại mỗi thời điểm cố định, sản phẩm được thu hồi và được đưa đi phân tích sắc ký khí, và sự thay đổi theo thời gian của hiệu quả làm việc của chất xúc tác được xác định. Ngoài ra, by phương pháp phân tích LECO-Cacbon (phương pháp phân tích bằng cách sử dụng máy phân tích định lượng được sản xuất bởi LECO JAPAN CORPORATION bằng quá trình đốt cháy và phương pháp hấp thụ chiếu tia hồng ngoại không phân tán), lượng cacbon lắng trên chất xúc tác sau thử nghiệm phản ứng được đo. Hiệu quả làm việc của chất xúc tác được tổng hợp của mẫu hiện tại, và sự thay đổi theo thời gian của hiệu quả làm việc của chất xúc tác được thể hiện trong Fig.2 và Fig.5, tương ứng.

(Ví dụ 2)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeAl-MFI ($\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Al}) = 120,3$) trong ví dụ 2 sẽ được mô tả.

Zeolit FeAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1 ngoại trừ việc dung dịch bao gồm 58,9g oxit silic dạng keo (SiO_2 30,6% trọng lượng, Na_2O 0,4% trọng lượng, và H_2O 69,0% trọng lượng), và 1,69g natri hydroxit được pha chế thành dung dịch A, và dung dịch bao gồm 0,29g nhôm sulfat n-hydrat, 0,24g sắt nitrat 9-hydrat, 3,10g tetrapropylamoni bromua, và 187,8g nước tinh khiết được pha chế thành dung dịch B. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là $\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Al}) = 120,3$, $\text{Fe}/(\text{Fe} + \text{Al}) = 0,5$, và $\text{Al}/(\text{Fe} + \text{Al}) = 0,5$ bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.1).

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/ SiO_2 là 75% trọng lượng/25% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Bằng cách sử dụng bột Zeolit FeAl-MFI loại được tổng hợp phù hợp với các bước nêu trên, bột oxit silic, và tinh bột, việc đúc và trao đổi ion được thực

hiện bằng cách tương tự như trong ví dụ 1, và zeolit FeAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có dạng hình trụ được tạo ra. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 75% trọng lượng/25% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.1).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 75% trọng lượng/25% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic trong hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc được thực hiện bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1 ngoại trừ việc thời gian phản ứng được thay đổi tới khoảng 330 giờ. Ngoài ra, bằng phương pháp phân tích LECO-Cacbon, lượng cacbon lắng trên chất xúc tác sau thử nghiệm phản ứng được đo. Hiệu quả làm việc của chất xúc tác được tổng hợp của mẫu hiện tại được thể hiện trong Fig.2.

(Ví dụ so sánh 1)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI (Si/(Fe + Ga + Al) = 121,3) trong ví dụ so sánh 1 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là Si/(Fe + Ga + Al) = 121,3, Fe/(Fe + Ga + Al) = 0,4, Ga/(Fe + Ga + Al) = 0,3, và Al/(Fe + Ga + Al) = 0,3 bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.1).

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit nhôm (tỷ lệ phối trộn Zeolit/Al₂O₃ là 77% trọng lượng/23% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Trong khi bổ sung lượng đầy đủ nước tinh khiết vào zeolit FeGaAl-MFI

loại Na dạng bột được tổng hợp phù hợp với các bước nêu trên và bột nhôm (CATALOID AP-1 được sản xuất bởi JGC Catalysts và Chemicals Ltd., hàm lượng Al_2O_3 là 71,7% trọng lượng), zeolit FeGaAl-MFI loại Na dạng bột và bột nhôm được nhào để tạo ra hỗn hợp zeolit/oxit nhôm trong trạng thái thô. Sau đó, hỗn hợp thô thu được được xử lý đưa về hình dạng hình trụ (1,0mm ϕ) bằng máy ép đùn, và sản phẩm dư được làm khô ở 120°C trong 3 giờ, và đốt cháy ở 550°C trong 3 giờ dưới điều kiện có sự lưu thông không khí, và zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit nhôm được tạo ra. Chất xúc tác hỗn hợp được đưa đi trao đổi ion bằng 2,2 mol/L dung dịch nước amoni nitrat dưới hồi lưu sôi và sau đó được rửa bằng nước, bước này được lặp lại bốn lần (bước trao đổi ion được thực hiện trong hai giờ mỗi lần, và 2,2 mol/L dung dịch nước amoni nitrat được thay mới mỗi lần), và sau đó sản phẩm dư được làm khô ở 120°C trong 3 giờ, và đốt cháy ở 550°C trong 3 giờ dưới điều kiện có sự lưu thông không khí, và zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit nhôm được tạo ra. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit nhôm = 77% trọng lượng/23% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.1).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit nhôm (tỷ lệ phối trộn Zeolit/ Al_2O_3 là 77% trọng lượng/23% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit nhôm có dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Thử nghiệm phản ứng được thực hiện bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1 ngoại trừ việc LHSV của n-hexan được thay đổi đến $5,0 \text{ giờ}^{-1}$ (tốc độ dòng cung cấp của n-hexan là 10,0mL/giờ), và thời gian phản ứng được thay đổi tới khoảng 100 giờ. Ngoài ra, bằng phương pháp phân tích LECO-Cacbon, lượng cacbon

lắng trên chất xúc tác sau thử nghiệm phản ứng được đo. Hiệu quả làm việc của chất xúc tác được tổng hợp của mẫu hiện tại, và sự thay đổi theo thời gian của hiệu quả làm việc của chất xúc tác được thể hiện trong Fig.2 và Fig.5, tương ứng.

Trong mẫu được đúc và được làm lắng bằng zeolit FeGaAl-MFI và chất kết dính oxit nhôm (ví dụ so sánh 1), mặc dù sản lượng propylen ban đầu thể hiện giá trị cao khoảng 18% trọng lượng, như có thể thấy được từ sự thay đổi theo thời gian trong Fig.5, sự giảm sản lượng được quan sát thấy từ khoảng thời gian sau khi trôi qua 80 giờ, và sự giảm rõ ràng của hiệu quả làm việc của chất xúc tác được xác nhận sau khi trôi qua 100 giờ. Mặt khác, trong mẫu được đúc và được lắng tại cùng một tỷ lệ trộn như của mẫu trong ví dụ so sánh 1 bằng cách sử dụng oxit silic làm chất kết dính (ví dụ 1), mặc dù sản lượng propylen ban đầu hơi thấp, việc hạn chế sản lượng chất thơm là kém, và kết quả là, tuổi thọ của chất xúc tác là 340 giờ hoặc lâu hơn là đạt được (xem Fig.5).

Khi lượng cacbon lắng trên chất xúc tác sau thử nghiệm phản ứng được đo, lượng lắng đọng là 24% trọng lượng trong 100 giờ trong mẫu sử dụng chất kết dính oxit nhôm và là 4,8% trọng lượng trong 340 giờ trong mẫu sử dụng chất kết dính oxit silic (Fig.2), do đó phát hiện ra rằng lượng cacbon lắng đọng được giảm xuống 1/5 hoặc nhỏ hơn. Ngoài ra, đối với zeolit FeGaAl-MFI, bằng cách sử dụng mẫu được đúc và làm lắng bằng chất kết dính oxit silic (ví dụ 2), ảnh hưởng tương tự có thể được quan sát thấy (Fig.2). Bằng cách đúc và trộn với chất kết dính oxit silic, điểm axit trên bề mặt bên ngoài của zeolit được che phủ và bất hoạt, và việc tạo ra chất thơm được ngăn chặn, do đó việc ngăn chặn khả năng lắng đọng cacbon được cải thiện đáng kể, và kết quả là, được xác nhận rằng tuổi thọ lâu hơn của chất xúc tác.

(Ví dụ 3)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI ($\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$) trong ví dụ 3 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là $\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$, $\text{Fe}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,4$, $\text{Ga}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$, và $\text{Al}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$ bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.3).

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/ SiO_2 68% trọng lượng/32% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Bằng cách sử dụng zeolit FeGaAl-MFI loại Na dạng bột được tổng hợp phù hợp với các bước nêu trên, bột oxit silic, và tinh bột, việc đúc và trao đổi ion được thực hiện bằng cách tương tự như trong ví dụ 1, và zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có dạng hình trụ, trong đó mỗi tỷ lệ hỗn hợp được thay đổi, được pha chế. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 68% trọng lượng/32% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.3).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/ SiO_2 là 68% trọng lượng/32% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, được tạo kích thước sao cho có độ dài nằm trong khoảng từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Trong thử nghiệm phản ứng, phản ứng crackinh chất xúc tác của n-hexan được thực hiện bằng lò phản ứng dòng chảy tầng cố định. Chất xúc tác có lượng 1,44 g (hàm lượng zeolit là 0,98g, 2,0mL là thể tích đổ đầy) được đổ đầy vào ống phản ứng thép không gỉ (làm từ SUS316)

có đường kính bên trong là 12,6mm, bông thủy tinh được gói trước và sau lớp chất xúc tác, và ngoài ra các hạt oxit nhôm được lấp đầy trước và sau bông thủy tinh.

Đối với các điều kiện phản ứng, dưới điều kiện phản ứng có nhiệt độ phản ứng là 565°C, tại áp suất tổng là 0,1MPa, và WHSV (vận tốc không gian của trọng lượng tính theo giờ) của n-hexan là 6,0 giờ⁻¹ (tốc độ dòng cung cấp của n-hexan là 5,9 g/giờ), phản ứng crackinh chất xúc tác của n-hexan được thực hiện trong khoảng 360 giờ. Các sản phẩm pha lỏng và pha khí được thu hồi trong khoảng 30 giờ từ khi bắt đầu phản ứng, và được đưa đi phân tích sắc ký khí, tốc độ chuyển đổi nguyên liệu (% trọng lượng) và sản lượng (% trọng lượng) của olefin bậc thấp (etylen và propylen) và hydrocacbon thơm được xác định, và được sử dụng làm các chỉ tiêu đánh giá hiệu quả của chất xúc tác trong giai đoạn phản ứng ban đầu. Ngoài ra, tại mỗi thời điểm cố định, sản phẩm được thu hồi và được đưa đi phân tích sắc ký khí, và sự thay đổi theo thời gian của hiệu quả làm việc của chất xúc tác được xác định. Ngoài ra, bằng phương pháp phân tích LECO-Cacbon, lượng cacbon lắng trên chất xúc tác sau thử nghiệm phản ứng được đo. Hiệu quả làm việc của chất xúc tác được tổng hợp của mẫu hiện tại được thể hiện trong Fig.4.

(Ví dụ 4)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI ($\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$) trong ví dụ 4 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là $\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$, $\text{Fe}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,4$, $\text{Ga}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$, và $\text{Al}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$ bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.3).

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn

hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Bằng cách sử dụng zeolit FeGaAl-MFI loại Na dạng bột được tổng hợp phù hợp với các bước nêu trên, bột oxit silic, và tinh bột, việc đúc và trao đổi ion được thực hiện bằng cách tương tự như trong ví dụ 1, và zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, trong đó mỗi tỷ lệ hỗn hợp được thay đổi, được pha chế. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 90% trọng lượng/10% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.3).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Thử nghiệm phản ứng được thực hiện bằng một cách tương tự như trong ví dụ 3 ngoại trừ việc lượng đồ đầy của chất xúc tác được thay đổi đến 1,09g (hàm lượng zeolit là 0,98g, và 2,0mL là thể tích đồ đầy), và thời gian phản ứng được thay đổi tới khoảng 480 giờ. Ngoài ra, bằng phương pháp phân tích LECO-Cacbon, lượng cacbon lắng trên chất xúc tác sau thử nghiệm phản ứng được đo.

Hiệu quả làm việc của chất xúc tác được tổng hợp của mẫu hiện tại, và sự thay đổi theo thời gian của hiệu quả làm việc của chất xúc tác được thể hiện trong Fig.4 và Fig.5, tương ứng.

Fig.4 thể hiện hiệu quả làm việc của chất xúc tác được tổng hợp của mỗi chất xúc tác hỗn hợp FeGaAl-MFI/SiO₂ có thành phần trộn khác nhau. Ba loại

mẫu có hàm lượng khác nhau của zeolit (68% trọng lượng, 74% trọng lượng, và 90% trọng lượng) được pha chế, và khi hiệu quả làm việc ban đầu đã được kiểm tra, đối với hàm lượng zeolit trở nên cao hơn, tốc độ chuyển đổi phản ứng, sản lượng olefin bậc thấp, và sản lượng chất thơm được làm gia tăng. Ngoài ra, thậm chí nếu các mẫu bất kỳ được sử dụng, thì sản lượng chất thơm được ngăn chặn tới giá trị thấp là nhỏ hơn hoặc bằng 5,0% trọng lượng, và kết quả là, tuổi thọ của chất xúc tác là 340 giờ hoặc lâu hơn được tìm ra. Đặc biệt là, thậm chí trong một mẫu có hàm lượng zeolit cao (90% trọng lượng, trong ví dụ 4), thì sản lượng chất thơm ban đầu được làm giảm xuống là 4,6% trọng lượng, kết quả là, tuổi thọ của chất xúc tác rất lâu là 480 giờ hoặc lâu hơn có thể đạt được (xem Fig.5).

Do đó, xác nhận rằng chất xúc tác hỗn hợp của chất kết dính oxit silic cho sản lượng propylen cao trong phạm vi rộng của tỷ lệ pha trộn oxit silic (khoảng từ 10 đến 30% trọng lượng), và tuổi thọ của chất xúc tác là lâu tại cùng một thời gian.

(Ví dụ 5)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI ($\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$) trong ví dụ 5 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là $\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$, $\text{Fe}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,4$, $\text{Ga}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$, và $\text{Al}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$ bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X.

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình

dạng hình trụ được pha chế với một cách tương tự như trong ví dụ 4. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 90% trọng lượng/10% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.6).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Thử nghiệm phản ứng được thực hiện bằng một cách tương tự như trong ví dụ 4 ngoại trừ việc LHSV của n-hexan được thay đổi đến 6,0 giờ⁻¹ (tốc độ dòng cung cấp của n-hexan là 12,0mL/giờ), và thời gian phản ứng được thay đổi tới khoảng 30 giờ (việc lấy mẫu được thực hiện trong 5, 24, và 30 giờ từ khi bắt đầu phản ứng). Hiệu quả làm việc ban đầu của chất xúc tác của mẫu hiện tại được thể hiện trong Fig.6.

(Ví dụ 6)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI (Si/(Fe + Ga + Al) = 121,3) trong ví dụ 6 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là Si/(Fe + Ga + Al) = 121,3, Fe/(Fe + Ga + Al) = 0,4, Ga/(Fe + Ga + Al) = 0,3, và Al/(Fe + Ga + Al) = 0,3 bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X.

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ được pha chế với một cách tương tự như trong ví dụ 4. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 90% trọng lượng/10% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.6).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Thử nghiệm phản ứng được thực hiện bằng một cách tương tự như trong ví dụ 4 ngoại trừ việc LHSV của n-hexan được thay đổi đến 7,0 giờ⁻¹ (tốc độ dòng cung cấp của n-hexan là 14,0mL/giờ), và thời gian phản ứng được thay đổi tới khoảng 30 giờ (việc lấy mẫu được thực hiện trong 5, 24, và 30 giờ từ khi bắt đầu phản ứng). Hiệu quả làm việc ban đầu của chất xúc tác của mẫu hiện tại được thể hiện trong Fig.6.

(Ví dụ so sánh 2)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI (Si/(Fe + Ga + Al) = 121,3) trong ví dụ so sánh 2 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là Si/(Fe + Ga + Al) = 121,3, Fe/(Fe + Ga + Al) = 0,4, Ga/(Fe + Ga + Al) = 0,3, và Al/(Fe + Ga + Al) = 0,3 bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X.

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng)

sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ được pha chế với một cách tương tự như trong ví dụ 4. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 90% trọng lượng/10% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.6).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) như ví dụ so sánh 2 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Thử nghiệm phản ứng được thực hiện bằng một cách tương tự như trong ví dụ 4 ngoại trừ việc LHSV của n-hexan được thay đổi đến 15,0 giờ⁻¹ (tốc độ dòng cung cấp của n-hexan là 30,0mL/giờ), và thời gian phản ứng được thay đổi tới khoảng 30 giờ (việc lấy mẫu được thực hiện trong 5, 24, và 30 giờ từ khi bắt đầu phản ứng). Hiệu quả làm việc ban đầu của chất xúc tác của mẫu hiện tại được thể hiện trong Fig.6.

Fig.6 thể hiện quả của LHSV (thời gian tiếp xúc) thể hiện trong hiệu suất ban đầu của chất xúc tác hỗn hợp FeGaAl-MFI/SiO₂. Dựa vào ví dụ 4, đối với việc LHSV tăng từ 4,5 → 6,0 → 7,0 → 15,0 giờ⁻¹ (việc rút ngắn thời gian tiếp xúc), tốc độ chuyển đổi phản ứng, sản lượng olefin bậc thấp, và sản lượng chất thơm được làm giảm từ từ, nhưng sự giảm sản lượng propylen tại LHSV là từ 4,5 đến 7,0 giờ⁻¹ là cực kỳ nhỏ (15,6 → 15,1% trọng lượng). Mặt khác, sản lượng chất thơm được làm giảm tới khoảng bằng một nửa sản lượng (4,6 → 2,2% trọng lượng). Do đó, xác nhận rằng chất xúc tác hỗn hợp sử dụng chất kết

dính oxit silic đưa ra sản lượng propylen cao vượt quá 15% trọng lượng trong phạm vi rộng của LHSV (thời gian tiếp xúc). Ngoài ra, trong Fig.6, bằng cách thiết lập thời gian tiếp xúc với n-hexan là 0,23 (ví dụ 4), 0,17 (ví dụ 5), 0,14 (ví dụ 6), và 0,07 (ví dụ so sánh 2), thời gian tiếp xúc thể hiện tỷ lệ nghịch với LHSV, tỷ lệ nghịch với LHSV là 4,5, 6,0, 7,0, và 15,0 giờ⁻¹, mỗi thử nghiệm được thực hiện.

(Ví dụ 7)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI ($\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$) trong ví dụ 7 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là $\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$, $\text{Fe}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,4$, $\text{Ga}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$, và $\text{Al}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$ bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X.

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ được pha chế với một cách tương tự như trong ví dụ 4. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 90% trọng lượng/10% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.7).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến

2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Thử nghiệm phản ứng được thực hiện bằng một cách tương tự như trong ví dụ 5 ngoại trừ việc nhiệt độ phản ứng được thay đổi đến 585°C, và thời gian phản ứng được thay đổi tới khoảng 15 giờ (việc lấy mẫu được thực hiện trong 5, và 15 giờ từ khi bắt đầu phản ứng). Hiệu quả làm việc ban đầu của chất xúc tác của mẫu hiện tại được thể hiện trong Fig.7.

(Ví dụ 8)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI ($\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$) trong ví dụ 8 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là $\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 121,3$, $\text{Fe}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,4$, $\text{Ga}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$, và $\text{Al}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$ bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X.

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ được pha chế với một cách tương tự như trong ví dụ 4. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 90% trọng lượng/10% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X (xem Fig.7).

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến

2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Thử nghiệm phản ứng được thực hiện bằng một cách tương tự như trong ví dụ 5 ngoại trừ việc nhiệt độ phản ứng được thay đổi đến 635°C, và thời gian phản ứng được thay đổi tới khoảng 15 giờ (việc lấy mẫu được thực hiện trong 5, và 15 giờ từ khi bắt đầu phản ứng). Hiệu quả làm việc ban đầu của chất xúc tác của mẫu hiện tại được thể hiện trong Fig.7.

Fig.7 thể hiện ảnh hưởng của nhiệt độ phản ứng tóm tắt trong hiệu suất ban đầu của chất xúc tác hỗn hợp FeGaAl-MFI/SiO₂. Dựa vào ví dụ 5, đối với nhiệt độ tăng từ 565°C → 585°C → 635°C, tốc độ chuyển đổi phản ứng, sản lượng olefin bậc thấp, và sản lượng chất thơm được cải thiện, và tại 635°C, sản lượng olefin bậc thấp bằng 13,3% trọng lượng của sản lượng etylen và 20,5% trọng lượng của sản lượng propylen được đạt được. Mặt khác, sản lượng chất thơm là 6,5% trọng lượng thậm chí là 635°C, và giá trị thấp hơn (7,3% trọng lượng, xem Fig.2) trong thử nghiệm phản ứng tại 565°C bằng cách sử dụng chất xúc tác hỗn hợp có chất kết dính oxit nhôm (ví dụ so sánh 1). Do đó, xác nhận rằng chất xúc tác hỗn hợp sử dụng chất kết dính oxit silic đưa ra năng suất cao của olefin bậc thấp trong khi ngăn chặn sự tạo thành chất thơm, thậm chí khi được sử dụng để cracking chất xúc tác tại nhiệt độ phản ứng vượt quá 600°C.

(Ví dụ 9)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI (Si/(Fe + Ga + Al) = 121,3) trong ví dụ 9 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là Si/(Fe + Ga + Al) = 121,3, Fe/(Fe + Ga + Al) = 0,4, Ga/(Fe + Ga + Al) = 0,3, và Al/(Fe + Ga + Al) = 0,3 bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X.

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn

hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ được pha chế với một cách tương tự như trong ví dụ 4. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 90% trọng lượng/10% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X.

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm đánh giá hiệu quả làm việc của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 90% trọng lượng/10% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Bằng cách sử dụng thiết bị thử nghiệm phản ứng tương tự như trong các ví dụ từ 1 đến 8, và bằng cách thiết lập lượng đổ đầy của chất xúc tác đến 2,0mL và tổng áp suất là 0,1MPa (phương pháp đổ đầy chất xúc tác là tương tự như trong các ví dụ từ 1 đến 8), khoảng 1,000 giờ phản ứng n-hexan cracking chất xúc tác được thực hiện theo các điều kiện hoạt động sau đây.

Bước 1 (từ khi bắt đầu phản ứng đến khoảng 200 giờ trôi qua): nhiệt độ phản ứng được thiết lập đến 565°C, và LHSV của n-hexan được thiết lập trong 7,0 giờ⁻¹.

Bước 2 (từ khoảng 200 giờ đến khoảng 380 giờ sau khi bắt đầu phản ứng): nhiệt độ phản ứng được giữ ở 565°C, và LHSV của n-hexan được thiết lập đến 6,0 giờ⁻¹ để kéo dài thời gian tiếp xúc với n-hexan.

Bước 3 (từ khoảng 380 giờ đến khoảng 540 giờ sau khi bắt đầu phản ứng): nhiệt độ phản ứng được giữ ở 565°C, và LHSV của n-hexan được thiết lập đến 5,0 giờ⁻¹ để kéo dài thời gian tiếp xúc với n-hexan.

Bước 4 (từ khoảng 540 giờ đến khoảng 620 giờ sau khi bắt đầu phản ứng): nhiệt độ phản ứng được giữ ở 565°C, và LHSV của n-hexan được thiết lập đến 4,5 giờ⁻¹ để kéo dài thời gian tiếp xúc với n-hexan.

Bước 5 (từ khoảng 620 giờ đến khoảng 740 giờ sau khi bắt đầu phản ứng): nhiệt độ phản ứng được làm gia tăng đến 570°C, và LHSV của n-hexan được giữ lại ở 4,5 giờ⁻¹.

Bước 6 (từ khoảng 740 giờ đến khoảng 835 giờ sau khi bắt đầu phản ứng): nhiệt độ phản ứng được làm gia tăng đến 580°C, và LHSV của n-hexan được giữ lại ở 4,5 giờ⁻¹.

Bước 7 (từ khoảng 835 giờ đến khoảng 920 giờ sau khi bắt đầu phản ứng): nhiệt độ phản ứng được làm gia tăng đến 585°C, và LHSV của n-hexan được giữ lại ở 4,5 giờ⁻¹.

Bước 8 (từ khoảng 920 giờ đến khoảng 1,000 giờ sau khi bắt đầu phản ứng): nhiệt độ phản ứng được làm gia tăng đến 595°C, và LHSV của n-hexan được giữ lại ở 4,5 giờ⁻¹.

Sau khi phản ứng được bắt đầu dưới các điều kiện hoạt động nêu trên, tại mỗi thời điểm cố định, sản phẩm được thu hồi và được đưa đi phân tích sắc ký khí, và sự thay đổi theo thời gian của hiệu quả làm việc của chất xúc tác được xác định. Sự thay đổi theo thời gian của hiệu quả làm việc của chất xúc tác của mẫu hiện tại được thể hiện trong Fig.8 (sự thay đổi theo thời gian của tốc độ chuyển đổi của n-hexan và sản lượng etylen/sản lượng propylen) và Fig.9 (sự thay đổi theo thời gian của tốc độ chuyển đổi của sản lượng n-hexan và hydrocacbon thơm).

Từ kết quả kiểm tra trong các ví dụ từ 4 đến 8, phát hiện ra rằng sự giảm sản lượng propylen nằm trong khoảng LHSV là từ 4,5 đến 7,0 giờ⁻¹ (nhiệt độ phản ứng được cố định ở 565°C) là cực kỳ nhỏ, và sản lượng chất thơm tại nhiệt

độ phản ứng lên đến khoảng 635°C được ngăn chặn thấp (LHSV được cố định tại $6,0 \text{ giờ}^{-1}$) được tạo ra. Do đó, được kiểm tra là tuổi thọ của chất xúc tác có thể được kéo dài bao lâu bằng cách kết hợp một cách phù hợp các nhân tố hoạt động mà ảnh hưởng đáng kể lên việc tạo ra chất thơm (tuổi thọ chất xúc tác). Đối với mẫu chất xúc tác, chất xúc tác hỗn hợp FeGaAl-MFI/SiO₂ mà được sử dụng trong các ví dụ từ 4 đến 8 được sử dụng, đối với điều kiện tại thời điểm bắt đầu phản ứng, nhiệt độ phản ứng được đặt đến 565°C và LHSV được thiết lập đến $7,0 \text{ giờ}^{-1}$ sao cho sản lượng chất thơm được ngăn chặn thấp hơn, và phản ứng được bắt đầu. Các hoạt động bù đắp được thực hiện bằng cách làm giảm LHSV một cách tuần tự đến $7,0 \rightarrow 6,0 \rightarrow 4,5 \text{ giờ}^{-1}$ (việc kéo dài thời gian tiếp xúc) cùng với sự sụt giảm trong hiệu quả xúc tác (tốc độ phản ứng chuyển đổi), tốc độ chuyển đổi phản ứng được làm gia tăng và sản lượng propylen được duy trì. Sau đó, LHSV được cố định đến $4,5 \text{ giờ}^{-1}$, và các hoạt động bù đắp được thực hiện bằng cách tăng tuần tự nhiệt độ phản ứng đến $565^{\circ}\text{C} \rightarrow 570^{\circ}\text{C} \rightarrow 580^{\circ}\text{C} \rightarrow 585^{\circ}\text{C} \rightarrow 595^{\circ}\text{C}$, và tương tự là, tốc độ chuyển đổi phản ứng được làm gia tăng và sản lượng propylen được duy trì. Xác nhận rằng bằng cách kiểm soát các điều kiện hoạt động, thì tuổi thọ của chất xúc tác có thể được duy trì trong 1,000 giờ hoặc lớn hơn (xem các Fig.8 và 9).

(Ví dụ 10)

Tiếp theo, phương pháp tổng hợp zeolit FeGaAl-MFI ($\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 31,3$) trong ví dụ 10 sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI loại Na được tổng hợp bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1 ngoại trừ việc dung dịch bao gồm 58,9g oxit silic dạng keo (SiO₂ 30,6% trọng lượng, Na₂O 0,4% trọng lượng, và H₂O 69,0% trọng lượng), và 2,25g natri hydroxit được pha chế thành dung dịch A, và dung dịch bao gồm 0,76g nhôm sulfat n-hydrat, 0,44g gali nitrat n-hydrat, 0,98g sắt nitrat 9-hydrat, 4,65g tetrapropylamoni bromua, và 187,2g nước tinh khiết được pha chế thành

dung dịch B. Tỷ lệ thành phần mol nguyên tử của zeolit được xác định là $\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 31,3$, $\text{Fe}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,4$, $\text{Ga}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$, và $\text{Al}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 0,3$ bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X.

Tiếp theo, phương pháp pha chế zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 65% trọng lượng/35% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Bằng cách sử dụng zeolit FeGaAl-MFI loại Na dạng bột được tổng hợp phù hợp với các bước nêu trên, bột oxit silic, và tinh bột, zeolit FeGaAl-MFI loại proton/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ được pha chế bằng cách thực hiện đúc và trao đổi ion với một cách tương tự như trong ví dụ 3. Tỷ lệ thành phần trọng lượng của chất xúc tác hỗn hợp được xác định là zeolit/oxit silic = 65% trọng lượng/35% trọng lượng bằng dụng cụ đo huỳnh quang tia X.

Tiếp theo, phương pháp thử nghiệm tái chế chất xúc tác của zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic (tỷ lệ phối trộn Zeolit/SiO₂ là 65% trọng lượng/35% trọng lượng) sẽ được mô tả.

Zeolit FeGaAl-MFI/chất xúc tác hỗn hợp oxit silic có hình dạng hình trụ, mà được pha chế phù hợp với các bước nêu trên, có kích thước là từ 1,0 đến 2,0mm và được sử dụng làm mẫu chất xúc tác để đánh giá hiệu quả làm việc. Thử nghiệm phản ứng được thực hiện bằng một cách tương tự như trong ví dụ 1 ngoại trừ việc thời gian phản ứng được thay đổi tới khoảng 45 giờ (việc lấy mẫu được thực hiện trong 2, 20, 28, 32, và 44 giờ từ khi bắt đầu phản ứng). Ngoài ra, thử nghiệm phản ứng được dừng một lần tại thời điểm sau 45 giờ từ khi bắt đầu phản ứng, và bước tái chế chất xúc tác (đốt cháy và loại bỏ cacbon lắng trên chất xúc tác) được thực hiện theo các điều kiện hoạt động sau đây.

Bước 1: việc cung cấp nguyên liệu n-hexan cho lò phản ứng được dừng

lại, và nhiệt độ thường được làm lạnh xuống nhiệt độ phòng dưới dòng nitơ.

Bước 2: nhiệt độ lớp chất xúc tác được nâng dần đến khoảng 100°C, và sau đó được giữ trong một giờ trong khi cung cấp không khí pha loãng bởi nitơ (có nồng độ oxy là 0,5% thể tích) tại tốc độ dòng khí là khoảng 67 NL/giờ.

Bước 3: nhiệt độ lớp chất xúc tác được nâng dần đến khoảng 350°C, và sau đó được giữ trong một giờ trong khi cung cấp the không khí pha loãng bởi nitơ (có nồng độ oxy là 0,5% thể tích) tại tốc độ dòng khí là khoảng 67 NL/giờ.

Bước 4: nhiệt độ lớp chất xúc tác được nâng dần đến khoảng 450°C, và sau đó được giữ trong hai giờ trong khi cung cấp không khí pha loãng bởi nitơ (có nồng độ oxy là 0,5% thể tích) tại tốc độ dòng khí là khoảng 67 NL/giờ.

Bước 5: nhiệt độ lớp chất xúc tác được nâng dần đến khoảng 500°C, và sau đó được giữ trong 18 giờ trong khi cung cấp không khí pha loãng bởi nitơ (có nồng độ oxy là 1,0% thể tích) tại tốc độ dòng khí là khoảng 67 NL/giờ.

Bước 6: nhiệt độ lớp chất xúc tác được lưu trữ tại khoảng 500°C trong một giờ trong khi cung cấp không khí pha loãng bởi nitơ (có nồng độ oxy là 2,0% thể tích) tại tốc độ dòng khí là khoảng 67 NL/giờ.

Bước 7: nhiệt độ lớp chất xúc tác được nâng dần đến khoảng 535°C, và sau đó được giữ trong giờ trong khi cung cấp không khí pha loãng bởi nitơ (có nồng độ oxy là 2,0% thể tích) tại tốc độ dòng khí là khoảng 67 NL/giờ.

Bước 8: dòng khí được chuyển sang nitơ tinh khiết, và sau đó việc gia nhiệt lớp chất xúc tác được dừng lại và thường được làm mát xuống nhiệt độ phòng.

Sau khi bước tái chế chất xúc tác nêu trên được thực hiện, thử nghiệm phản ứng được tiếp tục dưới các điều kiện tương tự đối với thử nghiệm phản ứng ban đầu trừ giai đoạn lấy mẫu của sản phẩm (việc lấy mẫu được thực hiện trong 2, 5, 20, 27, và 44 giờ từ khi bắt đầu phản ứng). Fig.10 thể hiện sự thay

đổi theo thời gian của hiệu quả làm việc của chất xúc tác (tốc độ chuyển đổi của n-hexan).

Sự tái chế chất xúc tác được kiểm tra trong ví dụ của sáng chế. Trong ví dụ của sáng chế, chỉ nguyên liệu hydrocacbon được cung cấp cho chất xúc tác mà không sử dụng chất pha loãng như hơi nước trong nguyên liệu phản ứng, do đó, có thể coi rằng nhân tố suy giảm hoạt tính xúc tác về cơ bản chỉ là sự lắng đọng của cacbon. Do đó, hoạt tính xúc tác hồi phục và có thể được sử dụng lại bằng cách loại bỏ cacbon lắng đọng. Do đó, thử nghiệm phản ứng chất xúc tác được thực hiện (hoạt tính xúc tác được làm giảm trong thời gian ngắn bằng cách sử dụng mẫu có mật độ axit lớn ($\text{Si}/(\text{Fe} + \text{Ga} + \text{Al}) = 31,3$) trong ví dụ của sáng chế), phản ứng được ngưng lại một lần khi sự giảm hoạt tính được quan sát thấy, và không khí (có nồng độ oxy là 0,5 đến 2,0% thể tích) được pha loãng sao cho phù hợp với phương pháp hoạt động nêu trên (bước 1 đến 8) được cung cấp và cacbon được đốt cháy và loại bỏ.

Khi thử nghiệm phản ứng được tiếp tục sau bước tái chế, quan sát thấy rằng tốc độ chuyển đổi phản ứng đã thay đổi tương tự giống như sự thay đổi trong thử nghiệm phản ứng đầu tiên (xem Fig.10), và do đó xác nhận rằng bước đốt cháy và loại bỏ cacbon đã được thực hiện một cách phù hợp. Do đó, theo sáng chế, xác nhận rằng bằng cách sử dụng zeolit FeGaAl-MFI hoặc zeolit FeAl-MFI, mà được đúc và làm lắng bằng chất kết dính oxit silic, dưới điều kiện phù hợp, thì hiệu quả sản xuất propylen được duy trì trong một khoảng thời gian rất lâu, và ngoài ra chất xúc tác có hoạt tính giảm được tái chế bằng cách xử lý đốt cháy và loại bỏ cacbon, và có thể được sử dụng lại.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Chất xúc tác hỗn hợp dùng để sản xuất olefin bậc thấp từ nguyên liệu hydrocacbon, bao gồm:

zeolit là nhôm silicat kết tinh chứa gali và sắt hoặc sắt trong khung cấu tạo của zeolit và còn có khung cấu tạo gồm vòng 8 đến 12 phần tử; và

silic dioxit,

trong đó:

khí zeolit là nhôm silicat kết tinh chứa gali và sắt, và

mật độ axit là tỷ lệ thành phần số mol của silic trên tổng số mol của sắt, gali, và nhôm là từ 75,0 đến 200,0, tỷ lệ thành phần số mol của gali trên tổng số mol của sắt, gali, và nhôm là từ 0,1 đến 0,4, và tỷ lệ thành phần số mol của sắt trên tổng số mol của sắt, gali, và nhôm là từ 0,2 đến 0,6, và

khí zeolit là nhôm silicat kết tinh chứa sắt, và

mật độ axit là tỷ lệ thành phần số mol của silic trên tổng số mol của sắt và nhôm là từ 75,0 đến 200,0, và tỷ lệ thành phần số mol của sắt trên tổng số mol của sắt và nhôm là từ 0,4 đến 0,7.

2. Chất xúc tác hỗn hợp theo điểm 1, trong đó:

zeolit là nhôm silicat kết tinh chứa sắt và gali, và

mật độ axit là tỷ lệ thành phần số mol của silic trên tổng số mol của sắt, gali, và nhôm là từ 75,0 đến 200,0, tỷ lệ thành phần số mol của gali trên tổng số mol của sắt, gali, và nhôm là từ 0,1 đến 0,4, và tỷ lệ thành phần số mol của sắt trên tổng số mol của sắt, gali, và nhôm là từ 0,2 đến 0,6.

3. Chất xúc tác hỗn hợp theo điểm 1, trong đó:

zeolit là nhôm silicat kết tinh chứa sắt, và

mật độ axit là tỷ lệ thành phần số mol của silic trên tổng số mol của sắt và nhôm là từ 75,0 đến 200,0, và tỷ lệ thành phần số mol của sắt trên tổng số mol của sắt và nhôm là từ 0,4 đến 0,7.

4. Chất xúc tác hỗn hợp theo điểm 1, trong đó nồng độ silic dioxit là từ 5 đến 50% trọng lượng.

5. Phương pháp sản xuất chất xúc tác hỗn hợp theo điểm 1, phương pháp sản xuất này bao gồm: bước tổng hợp thủy nhiệt, bước đúc, và bước trao đổi ion.

6. Phương pháp sản xuất chất xúc tác hỗn hợp theo điểm 5, trong bước đúc của phương pháp này, dung dịch nước kiềm chứa tinh bột được sử dụng trong việc đúc hỗn hợp của zeolit và silic dioxit.

7. Phương pháp sản xuất olefin bậc thấp, mà trong phương pháp này việc sản xuất olefin bậc thấp bao gồm việc cho nguyên liệu hydrocacbon tiếp xúc với chất xúc tác hỗn hợp theo điểm 1, trong đó:

khí chứa lớn hơn hoặc bằng 15% trọng lượng nguyên liệu hydrocacbon được cung cấp cho chất xúc tác hỗn hợp, và việc sản xuất olefin bậc thấp từ nguyên liệu hydrocacbon được tiến hành ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 530°C đến 650°C.

8. Phương pháp sản xuất olefin bậc thấp, mà trong phương pháp này việc sản xuất olefin bậc thấp bao gồm việc cho nguyên liệu hydrocacbon tiếp xúc với chất xúc tác hỗn hợp theo điểm 1, trong đó:

khí chứa lớn hơn hoặc bằng 15% trọng lượng nguyên liệu hydrocacbon được cung cấp cho chất xúc tác hỗn hợp, và thời gian tiếp xúc của nguyên liệu hydrocacbon với chất xúc tác hỗn hợp là từ 0,08 đến 1,0 giờ.

9. Phương pháp sản xuất olefin bậc thấp theo điểm 7, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước tái chế, trong đó:

không khí hòa loãng với khí trơ được cung cấp cho chất xúc tác hỗn hợp, và cacbon lắng đọng được đốt và loại bỏ ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 450°C đến 600°C.

10. Chất xúc tác hỗn hợp theo điểm 1, trong đó zeolit là zeolit MFI.

11. Chất xúc tác hỗn hợp theo điểm 1, trong đó nồng độ của silic dioxit là từ 5 đến 40% trọng lượng.

HÌNH VẼ

[Fig.1]

	Ví dụ so sánh 1	Ví dụ 1	Ví dụ 2
Các loại zeolit	FeGaAl-MFI	FeGaAl-MFI	FeAl-MFI
Mật độ axit (Si/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	121,3	121,3	120,3
Thành phần mol của Fe (Fe/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	0,4	0,4	0,5
Thành phần mol của Ga (Ga/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	0,3	0,3	0,0
Thành phần mol của Al (Al/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	0,3	0,3	0,5
Chất kết dính được sử dụng để đúc	Oxit nhôm	Oxit silic	Oxit silic
Tỷ lệ trộn của zeolit/chất kết dính [% trọng lượng/% trọng lượng]	77/23	74/26	75/25

[Fig.2]

	Ví dụ so sánh 1	Ví dụ 1	Ví dụ 2
Hỗn hợp zeolit/oxit kim loại	FeGaAl-MFI/Al ₂ O ₃	FeGaAl-MFI/SiO ₂	FeAl-MFI/SiO ₂
Mật độ axit của zeolit (Si/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	121,3	121,3	120,3
Tỷ lệ trộn zeolit/chất kết dính [% trọng lượng/% trọng lượng]	77/23	74/26	75/25
Nhiệt độ phản ứng [°C]/Áp suất [MPa]	565/0,1	565/0,1	565/0,1
Lượng chất xúc tác được thay đổi [mL]	2,0	2,0	2,0
LHSV của n-hexan [giờ ⁻¹]	5,0	4,5	4,5
Sự chuyển đổi n-hexan ban đầu [% trọng lượng]	67,3	64,2	55,2
Sản lượng etylen ban đầu [% trọng lượng]	8,2	7,4	5,8
Sản lượng propylen ban đầu [% trọng lượng]	18,1	15,3	13,8
(Sản lượng không gian propylen theo thời gian [g-C ₃ =/g-zeolit.giờ])	(1,1)	(0,81)	(0,73)
Sản lượng hydrocacbon thơm ban đầu [% trọng lượng]	7,3	4,3	3,5
Tuổi thọ chất xúc tác [giờ]	80	340	330
Lượng than cốc lắng lại [% trọng lượng]	24,6	4,8	4,5

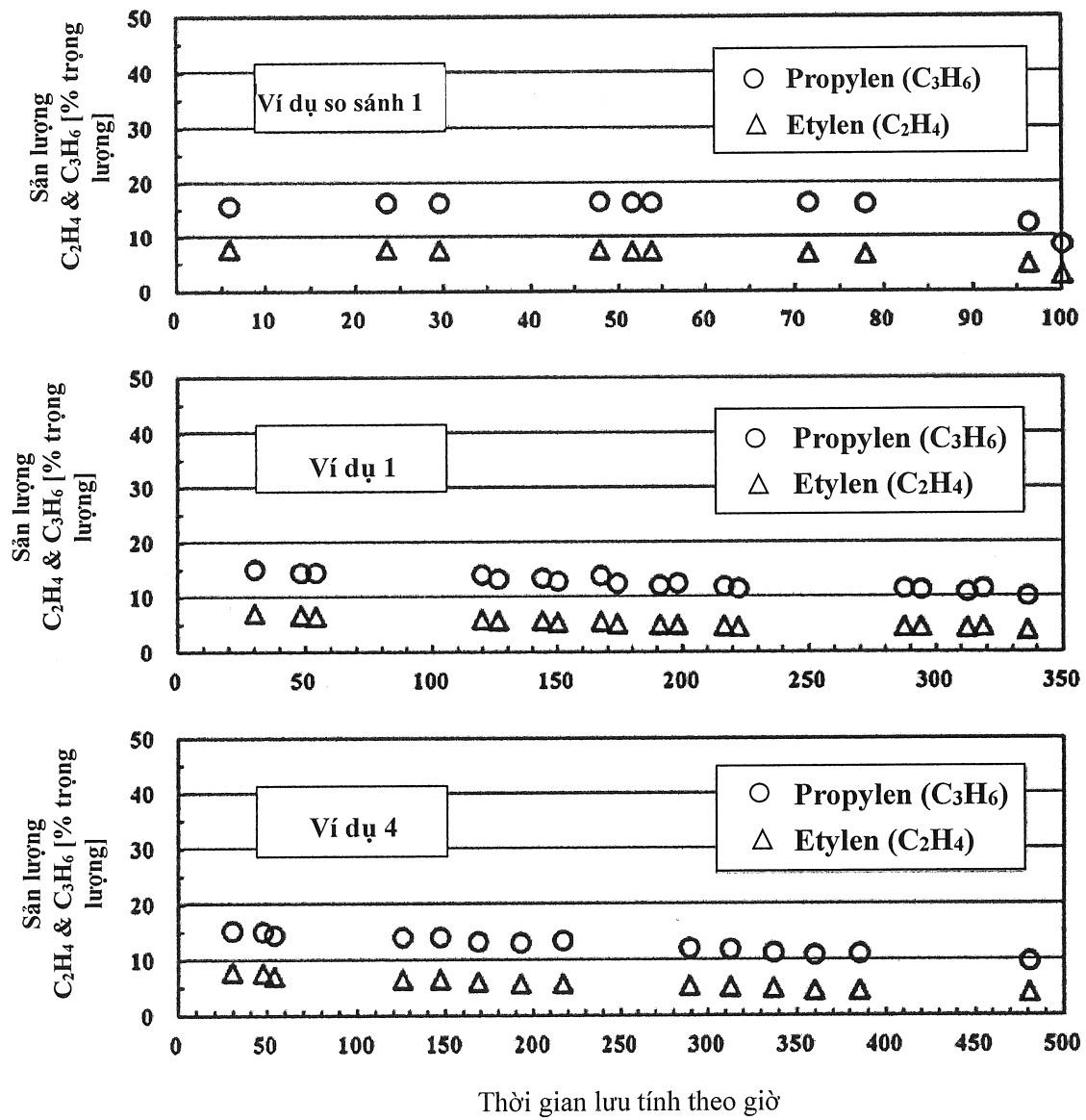
[Fig.3]

	Ví dụ 3	Ví dụ 1	Ví dụ 4
Các loại zeolit	FeGaAl-MFI	FeGaAl-MFI	FeGaAl-MFI
Mật độ axit (Si/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	121,3	121,3	121,3
Thành phần mol của Fe (Fe/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	0,4	0,4	0,4
Thành phần mol của Ga (Ga/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	0,3	0,3	0,3
Thành phần mol của Al (Al/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	0,3	0,3	0,3
Chất kết dính được sử dụng để đúc	Oxit silic	Oxit silic	Oxit silic
Tỷ lệ trộn của zeolit/chất kết dính [% trọng lượng/% trọng lượng]	68/32	74/26	90/10

[Fig.4]

	Ví dụ 3	Ví dụ 1	Ví dụ 4
Hỗn hợp zeolit/oxit kim loại	FeGaAl-MFI/SiO ₂	FeGaAl-MFI/SiO ₂	FeGaAl-MFI/SiO ₂
Mật độ axit của zeolit (Si/(Fe+Ga+Al)) [mol/mol]	121,3	121,3	120,3
Tỷ lệ trộn zeolit/chất kết dính [% trọng lượng/% trọng lượng]	68/32	74/26	90/10
Nhiệt độ phản ứng [°C]/Áp suất [MPa]	565/0,1	565/0,1	565/0,1
Lượng chất xúc tác được thay đổi (Thành phần của) [mL]	1,44(0,98)	1,32(0,98)	1,09(0,98)
WHSV của n-hexan [giờ ⁻¹]	6,0	6,0	6,0
Sự chuyển đổi n-hexan ban đầu [% trọng lượng]	52,8	64,2	68,7
Sản lượng etylen ban đầu [% trọng lượng]	6,0	7,4	8,0
Sản lượng propylen ban đầu [% trọng lượng]	13,6	15,3	15,6
Sản lượng hydrocarbon thơm ban đầu [% trọng lượng]	2,5	4,3	4,6
Tuổi thọ chất xúc tác [giờ]	360	340	480
Lượng than cốc lắng lại [% trọng lượng]	3,4	4,8	8,2

[Fig.5]



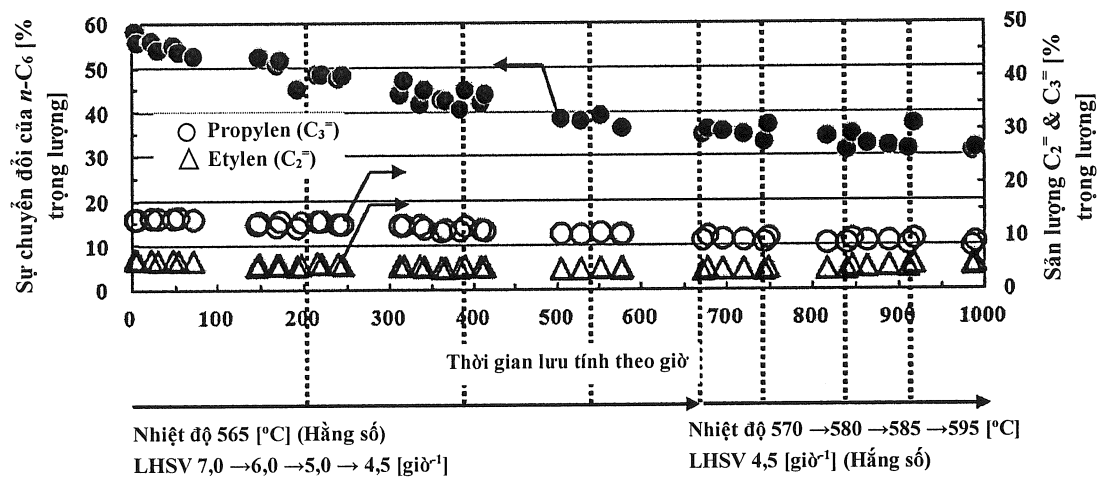
[Fig.6]

	Ví dụ 4	Ví dụ 5	Ví dụ 6	Ví dụ so sánh 2
Hỗn hợp zeolit/oxit kim loại	FeGaAl-MFI/SiO ₂	FeGaAl-MFI/SiO ₂	FeGaAl-MFI/SiO ₂	FeGaAl-MFI/SiO ₂
Mật độ axit của zeolit (Si/(Fe+Ga+Al))[mol/mol]	121,3	121,3	121,3	121,3
Tỷ lệ trộn zeolit/chất kết dính [% trọng lượng/% trọng lượng]	90/10	90/10	90/10	90/10
Nhiệt độ phản ứng [°C]/ Áp suất [MPa]	565/0,1	565/0,1	565/0,1	565/0,1
Lượng chất xúc tác được thay đổi [mL]	2,0	2,0	2,0	2,0
LHSV của n-hexan [giờ ⁻¹]	4,5	6,0	7,0	15,0
Thời gian tiếp xúc (=1/LHSV) [giờ]	0,23	0,17	0,14	0,07
Sự chuyển đổi n-hexan ban đầu [% trọng lượng]	68,7	60,4	59,3	41,0
Sản lượng etylen ban đầu [% trọng lượng]	8,0	6,8	6,4	4,1
Sản lượng propylen ban đầu [% trọng lượng]	15,6	15,2	15,1	10,7
Sản lượng hydrocacbon thơm ban đầu [% trọng lượng]	4,6	2,8	2,2	0,75

[Fig.7]

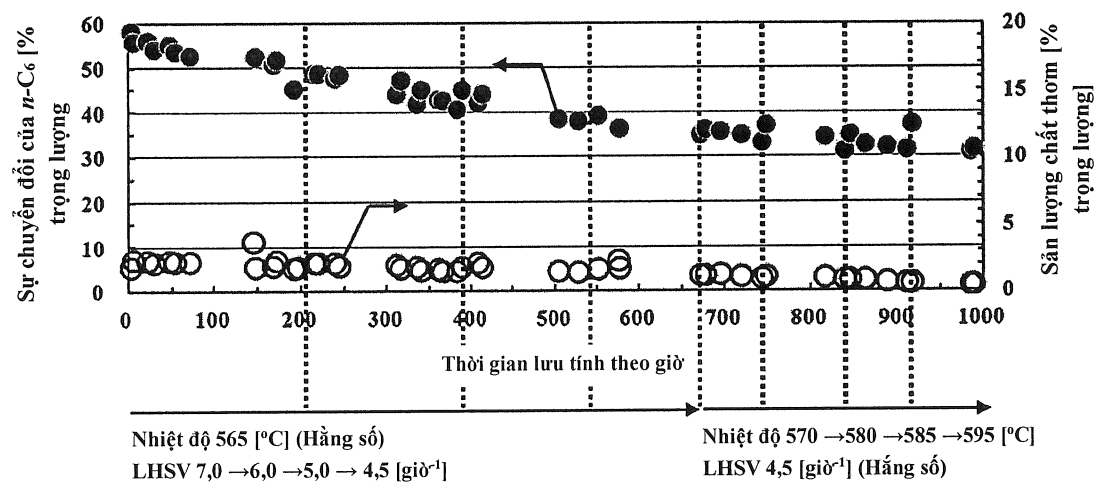
	Ví dụ 5	Ví dụ 7	Ví dụ 8
Hỗn hợp zeolit/oxit kim loại	FeGaAl-MFI/SiO ₂	FeGaAl-MFI/SiO ₂	FeGaAl-MFI/SiO ₂
Mật độ axit của zeolit (Si/(Fe+Ga+Al))[mol/mol]	121,3	121,3	121,3
Tỷ lệ trộn zeolit/chất kết dính [% trọng lượng/% trọng lượng]	90/10	90/10	90/10
Nhiệt độ phản ứng [°C]	565	585	635
Áp suất [MPa]	0,1	0,1	0,1
Lượng chất xúc tác được thay đổi [mL]	2,0	2,0	2,0
LHSV của n-hexan [giờ ⁻¹]	6,0	6,0	6,0
Sự chuyển đổi n-hexan ban đầu [% trọng lượng]	60,4	60,8	89,8
Sản lượng etylen ban đầu [% trọng lượng]	6,8	7,3	13,3
Sản lượng propylen ban đầu [% trọng lượng]	15,2	16,3	20,5
Sản lượng hydrocacbon thơm ban đầu [% trọng lượng]	2,8	3,3	6,5

[Fig.8]



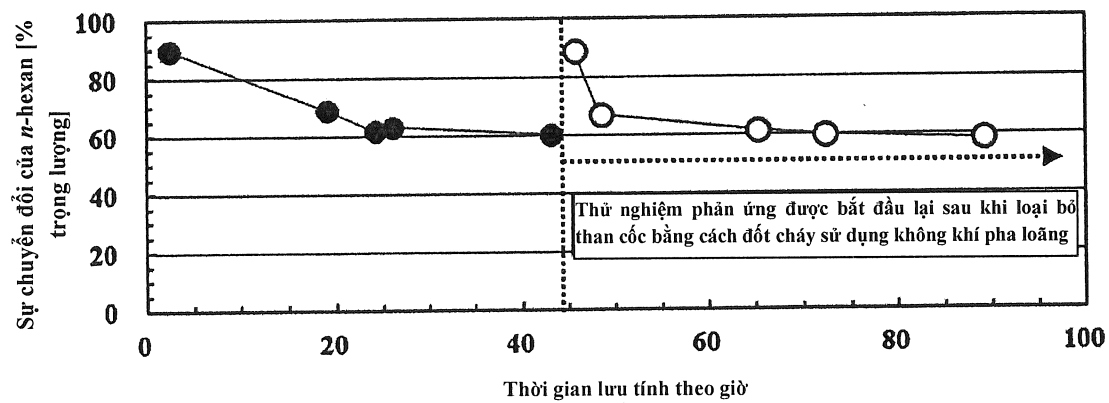
Chất xúc tác; FeGaAl-MFI/SiO₂(Si/(Fe+Ga+Al)=121,3), Zeolit/SiO₂=90% trọng lượng /10% trọng lượng
 Điều kiện phản ứng; Nhiệt độ: 565-595°C, Áp suất: 0,1MPa, Thể tích chất xúc tác: 2,0cc, LHSV là $n\text{-C}_6$: 4,5-7,0 giờ⁻¹

[Fig.9]



Chất xúc tác; FeGaAl-MFI/SiO₂(Si/(Fe+Ga+Al)=121,3), Zeolit/SiO₂=90% trọng lượng /10% trọng lượng
 Điều kiện phản ứng; Nhiệt độ: 565-595°C, Áp suất: 0,1MPa, Thể tích chất xúc tác: 2,0cc, LHSV là $n\text{-C}_6$: 4,5-7,0 giờ⁻¹

[Fig.10]



Chất xúc tác; FeGaAl-MFI*/SiO₂, Zeolit/SiO₂=65% trọng lượng /35% trọng lượng

*Si/(Fe+Ga+Al)=31,3, Fe/(Fe+Ga+Al)=0,4, Ga/(Fe+Ga+Al)=0,3, Al/(Fe+Ga+Al)=0,3

Điều kiện phản ứng; Nhiệt độ: 565°C, Áp suất: 0,1MPa, Thể tích chất xúc tác: 2,0cc, LHSV là n-C₆: 4,5-7,0 giờ⁻¹