



(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)   
**1-0021943**

(51)<sup>7</sup> **C07C 1/20, 11/02, 13/02, 15/02, 9/02, 9/14** (13) **B**

(21) 1-2016-00285

(22) 01.07.2014

(86) PCT/US2014/044999 01.07.2014

(87) WO2015/002922 08.01.2015

(30) 61/842,048 02.07.2013 US

(45) 25.10.2019 379

(43) 25.04.2016 337

(73) UT-BATTELLE, LLC (US)

One Bethel Valley Road, Oak Ridge, Tennessee 37831-6528, United States of America

(72) NARULA, Chaitanya (US), DAVISON, Brian H. (US)

(74) Công ty TNHH Sở hữu trí tuệ Thảo Thọ Quyển (INVENCO.,LTD)

(54) **PHƯƠNG PHÁP SẢN XUẤT NGUYÊN LIỆU HYDROCACBON**

(57) Phương pháp sản xuất nguyên liệu hydrocacbon, trong đó phương pháp này bao gồm cho ít nhất một rượu no không vòng có ít nhất từ 3 đến tối đa 10 nguyên tử cacbon tiếp xúc với chất xúc tác zeolit mang kim loại ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ ít nhất là 100°C đến 550°C, trong đó kim loại này là ion kim loại mang điện tích dương, và chất xúc tác zeolit mang kim loại có hoạt tính xúc tác để chuyển hóa rượu thành nguyên liệu hydrocacbon, trong đó phương pháp này sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa etylen với lượng nhỏ hơn 1% thể tích và các hợp chất hydrocacbon có ít nhất 8 nguyên tử cacbon với lượng ít nhất là 35% thể tích.

### **Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập**

Nói chung, sáng chế đề cập đến quy trình chuyển hóa có xúc tác rượu thành hydrocacbon, và cụ thể hơn là, sáng chế đề cập đến các phương pháp xúc tác dựa trên zeolit dùng cho quy trình chuyển hóa này.

### **Tình trạng kỹ thuật của sáng chế**

Như một phần của nỗ lực không ngừng trong việc tìm ra các giải pháp hiệu quả hơn về mặt chi phí, thân thiện với môi trường và độc lập để sản xuất và tiêu thụ nhiên liệu, quy trình chuyển hóa etanol thành hydrocacbon đã trở thành lĩnh vực nghiên cứu tích cực. Etanol chủ yếu được quan tâm dưới dạng nguyên liệu rượu bởi vì nó có khả năng được sản xuất với lượng lớn bằng phương pháp có thể thu hồi (ví dụ, lên men sinh khối). Tuy nhiên, một vài trở ngại cần được khắc phục trước khi quy trình như vậy có thể trở nên khả thi trong công nghiệp để sản xuất nguyên liệu hydrocacbon có đặc tính gần tương đương với xăng và các nhiên liệu hóa dầu khác.

Công bố đơn quốc tế số WO2012/174205 A1 đã bộc lộ phương pháp chuyển hóa etanol thành hydrocacbon, phương pháp này bao gồm bước cho etanol tiếp xúc với chất xúc tác zeolit mang kim loại ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ ít nhất là 100°C đến 550°C, trong đó etanol này có thể được sản xuất bằng quy trình lên men, kim loại này là ion kim loại mang điện tích dương và chất xúc tác zeolit mang kim loại là có hoạt tính xúc tác để chuyển hóa etanol thành hydrocarbon.

Công bố đơn yêu cầu cấp patent Mỹ số US2003/0171630 A1 đã bộc lộ phương pháp chuyển hóa rượu thành sản phẩm hydrocacbon chứa hợp chất hydrocacbon C<sub>2</sub> với lượng không quá 20%, trong đó phương pháp này bao gồm cho rượu tiếp xúc với chất xúc tác zeolit ZSM-5 mang vanadi ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ ít nhất là 250°C đến 350°C và ở tốc độ không gian thể tích chất lỏng theo giờ tối đa là 5 giờ<sup>-1</sup>, trong đó rượu này có thể được sản xuất bằng quy trình lên men và được chọn từ nhóm bao gồm etanol, butanol, isobutanol, hoặc hỗn hợp của chúng và là một thành phần của dung dịch nước với nồng độ không quá 20%.

Nhược điểm cụ thể khi sử dụng etanol trong quy trình chuyển hóa có xúc tác là một lượng đáng kể etylen có khuynh hướng được tạo ra, mà thường là một thành

phần không mong muốn trong nhiên liệu hydrocacbon. Hơn thế nữa, trong khi nguyên liệu hydrocacbon giàu các hydrocacbon cao (ví dụ, có ít nhất 8 nguyên tử cacbon) được mong muốn hơn, thì quy trình chuyển hóa etanol thường tạo ra nguyên liệu hydrocacbon giàu các hydrocacbon thấp hơn (ví dụ, có ít hơn 8 nguyên tử cacbon).

### **Bản chất kỹ thuật của sáng chế**

Mục đích của sáng chế là đề xuất được phương pháp chuyển hóa có xúc tác rượu thành hydrocacbon mà có lợi là tạo ra nguyên liệu hydrocacbon có lượng etylen ít hơn đáng kể và lượng hydrocacbon cao tương đối nhiều hơn, cụ thể là các hydrocacbon có ít nhất 6, 7, 8, 9, hoặc 10 nguyên tử cacbon, so với nguyên liệu được tổng hợp từ etanol hoặc metanol. Sáng chế thực hiện phương pháp này bằng cách chuyển hóa có xúc tác ít nhất một rượu no không vòng có ít nhất ba và tối đa 10 nguyên tử cacbon (dưới đây gọi là, “rượu- $C_{3+}$ ”). Theo các phương án khác, nguyên liệu rượu chỉ là hoặc bao gồm một loại rượu  $C_{3+}$ , hoặc chỉ là hoặc bao gồm hỗn hợp gồm hai hoặc nhiều rượu  $C_{3+}$ , hoặc chỉ là hoặc bao gồm hỗn hợp gồm ít nhất một rượu  $C_{3+}$  và etanol và/hoặc metanol. Hơn thế nữa, nguyên liệu hydrocacbon thu được có thể được sử dụng trực tiếp làm nhiên liệu, hoặc theo các phương án khác, có thể được trộn với nguyên liệu hoặc nhiên liệu hydrocacbon khác (ví dụ, xăng trùng chỉnh hoặc xăng cất trực tiếp) để điều chỉnh thích hợp các đặc tính mong muốn bất kỳ của thành phần của nguyên liệu cuối cùng, như lượng olefin, lượng các hợp chất thơm hoặc định mức octan.

Theo các phương án cụ thể hơn, phương pháp này bao gồm bước cho ít nhất một rượu no không vòng có ít nhất từ 3 đến tối đa 10 nguyên tử cacbon (rượu  $C_{3+}$ ) tiếp xúc với chất xúc tác zeolit mang kim loại ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ ít nhất là  $100^{\circ}\text{C}$  đến  $550^{\circ}\text{C}$ , trong đó kim loại này là ion kim loại mang điện tích dương, và chất xúc tác zeolit mang kim loại này là có hoạt tính xúc tác để chuyển hóa rượu  $C_{3+}$  (hoặc “nguyên liệu rượu” nói chung) thành nguyên liệu hydrocacbon. Tốt hơn nếu nguyên liệu hydrocacbon thu được chứa etylen với lượng nhỏ hơn 1 hoặc 0,5% thể tích đồng thời cũng chứa các hợp chất hydrocacbon có ít nhất 6, 7, 8, 9, hoặc 10 nguyên tử cacbon với lượng ít nhất là 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, hoặc 75% thể tích.

Một ưu điểm khác của phương pháp được mô tả ở đây là có thể được thực hiện mà không cần rượu phải ở trạng thái nguyên chất hoặc không được pha trộn, miễn là các thành phần được bao gồm khác hầu như không cản trở quá trình thu nguyên liệu hydrocacbon được mô tả trên đây theo cách khả thi. Ví dụ, bằng phương pháp được mô tả ở đây, phương pháp chuyển hóa hiệu quả có thể được tiến hành trên các dung dịch rượu chứa nước, bao gồm, ví dụ, dòng lên men của thùng lên men sinh khối. Ít nhất hai rượu  $C_{3+}$  có thể được sản xuất bằng phương pháp lên men bao gồm butanol và isobutanol. Theo các phương án khác, dung dịch rượu chứa nước có thể có nồng độ rượu cao (ví dụ, rượu nguyên chất hoặc rượu có nồng độ trên 50%), nồng độ rượu trung bình (ví dụ, ít nhất 20% và tối đa là 30%, 40%, hoặc 50%), hoặc nồng độ rượu thấp (ví dụ, tối đa hoặc nhỏ hơn 10% hoặc 5%). Theo cách khác, dung dịch chứa nước này có thể là dung dịch rượu hoặc hỗn hợp rượu bão hòa. Vì một vài rượu  $C_{3+}$  có độ hòa tan thấp hoặc hầu như không tan trong nước, nên theo cách khác rượu này có thể được trộn với nước ở dạng hai pha, mà có thể là, ví dụ, hai lớp khối riêng biệt hoặc huyền phù một pha (ví dụ, rượu) trong một pha khác (ví dụ, nước). Khả năng chuyển hóa các dung dịch rượu chứa nước của phương pháp được mô tả đặc biệt là có lợi vì cô và/hoặc chưng cất rượu từ dòng lên men (như được thực hiện trong các công nghệ hiện nay) cần nhiều năng lượng và phần lớn bù trừ vào lợi nhuận thu được từ chi phí ban đầu thấp khi sử dụng rượu sinh học.

#### **Mô tả chi tiết sáng chế**

Như được sử dụng ở đây, thuật ngữ "khoảng" thường được dùng để chỉ trong giới hạn  $\pm 0,5\%$ ,  $1\%$ ,  $2\%$ ,  $5\%$ , hoặc tối đa  $\pm 10\%$  của giá trị được thể hiện. Ví dụ, nồng độ bằng khoảng 20% thường chỉ  $20 \pm 2\%$  theo nghĩa rộng nhất, nghĩa là nằm trong khoảng từ 18 đến 22%. Ngoài ra, thuật ngữ "khoảng" có nghĩa là sai số của số đo bất kỳ (tức là, các giá trị giới hạn trong phương pháp đo), hoặc theo cách khác, mức biến đổi hoặc mức trung bình về đặc tính vật lý của một nhóm.

Trong phương pháp chuyển hóa được mô tả ở đây, ít nhất một rượu no không vòng có ít nhất từ 3 đến tối đa 10 nguyên tử cacbon (tức là, "rượu  $C_{3+}$ ") được chuyển hóa có xúc tác thành nguyên liệu hydrocacbon bằng cách cho rượu  $C_{3+}$  tiếp xúc với chất xúc tác zeolit mang kim loại ở các điều kiện (cụ thể là, nhiệt độ và

chọn lựa chất xúc tác) thích hợp để thực hiện phản ứng chuyển hóa này. Như được sử dụng ở đây, thuật ngữ “rượu  $C_{3+}$ ” có nghĩa là bao gồm một loại rượu hoặc hỗn hợp gồm hai hoặc nhiều rượu. Rượu  $C_{3+}$  có thể là rượu mạch thẳng hoặc mạch nhánh. Một vài ví dụ về rượu  $C_{3+}$  mạch thẳng bao gồm *n*-propanol, *n*-butanol, *n*-pentanol, *n*-hexanol, *n*-heptanol, *n*-octanol, *n*-nonanol, và *n*-decanol. Một vài ví dụ về rượu  $C_{3+}$  mạch nhánh bao gồm isopropanol, isobutanol, sec-butanol, *t*-butanol, isopentanol, 2-pentanol, 3-pentanol, rượu neopentyl, isohexanol, 2-hexanol, 3-hexanol, isohexanol, 2-heptanol, 3-heptanol, 4-heptanol, 6-methylheptanol, và 2-ethylhexanol.

Theo phương án thứ nhất, rượu được sử dụng trong phương pháp chuyển hóa có xúc tác chỉ là rượu  $C_{3+}$  đơn. Theo phương án thứ hai, rượu được sử dụng trong phương pháp chuyển hóa có xúc tác bao gồm hoặc chỉ là hỗn hợp gồm hai hoặc nhiều rượu  $C_{3+}$ . Theo phương án thứ ba, rượu được sử dụng trong phương pháp chuyển hóa có xúc tác bao gồm hỗn hợp gồm một, hai hoặc nhiều rượu  $C_{3+}$  kết hợp với etanol và/hoặc metanol. Theo một vài phương án, rượu được sử dụng trong phương pháp chuyển hóa có xúc tác là rượu mà được sản xuất bằng quy trình lên men (tức là, rượu sinh học). Một vài ví dụ về rượu  $C_{3+}$  mà được sản xuất bằng quy trình lên men bao gồm butanol và isobutanol. Trong dòng lên men, butanol và/hoặc isobutanol cũng thường được đi kèm bởi etanol, mặc dù lượng etanol và/hoặc metanol có thể thích hợp được làm giảm hoặc thậm chí hầu như được loại bỏ (ví dụ, tối đa hoặc nhỏ hơn 10%, 8%, 5%, 4%, 3%, 2%, hoặc 1%) bằng các phương pháp đã biết trong lĩnh vực kỹ thuật này, như làm bay hơi hoặc chưng cất. Theo các phương án cụ thể, rượu là một thành phần của dung dịch nước hoặc hệ hai pha như được phát hiện trong các dòng lên men. Trong các dòng lên men, rượu thường có nồng độ không quá (tối đa) 20% (thể tích/thể tích), 15%, 10%, hoặc 5%. Theo một vài phương án, dòng lên men được cho tiếp xúc trực tiếp với chất xúc tác (thông thường, sau khi lọc để loại bỏ các chất rắn) để thực hiện phương pháp chuyển hóa rượu trong dòng lên men. Theo các phương án khác, dung dịch rượu chứa nước được cô thêm thành rượu (ví dụ, chứa ít nhất hoặc tối đa 30%, 40%, 50%, 60%, 70%, 80%, 90%, 95%) hoặc là dung dịch rượu chứa nước bão hòa trước khi cho dung dịch rượu chứa nước này tiếp xúc với chất xúc tác. Dung dịch rượu chứa nước

được cô thêm có thể được tạo ra bằng cách, ví dụ, cô dòng lên men, như bằng cách chưng cất, hoặc bằng cách trộn rượu nguyên chất hoặc đậm đặc hoặc hỗn hợp của chúng với nước. Theo các phương án khác nữa, rượu này ở dạng rượu hầu như đã loại nước (ví dụ, 98%, 99%, hoặc 100% rượu) khi cho tiếp xúc với chất xúc tác.

Mặc dù, nhiều loại sản phẩm hydrocacbon có thể được sản xuất bằng phương pháp được mô tả, nhưng hỗn hợp hydrocacbon được xem xét chủ yếu ở đây thường bao gồm các hydrocacbon no, và cụ thể hơn là, các hydrocacbon thuộc nhóm alkan, có thể có mạch thẳng, hoặc mạch nhánh, hoặc hỗn hợp của chúng, cụ thể là khi sản phẩm hydrocacbon được sử dụng làm nhiên liệu. Các alkan có thể bao gồm các alkan có ít nhất 4, 5, 6, 7, hoặc 8 nguyên tử cacbon, và tối đa là 10, 11, 12, 14, 16, 17, 18 hoặc 20 nguyên tử cacbon. Một vài ví dụ về các alkan mạch thẳng bao gồm *n*-butan, *n*-pentan, *n*-hexan, *n*-heptan, *n*-octan, *n*-nonan, *n*-decan, *n*-undecan, *n*-dodecan, *n*-tridecan, *n*-tetradecan, *n*-pentadecan, *n*-hexadecan, *n*-heptadecan, *n*-octadecan, *n*-nonadecan, và *n*-eicosan. Một vài ví dụ về các alkan mạch nhánh bao gồm isobutan, isopentan, neopentan, isohexan, 3-metylpentan, 2,3-dimetylbutan, 2,2-dimetylbutan, 2-metylhexan, 3-metylhexan, 2,2-dimetylpentan, 2,3-dimetylpentan, 2,4-dimetylpentan, 3,3-dimetylpentan, 2-metylheptan, và 2,2,4-trimetylpentan (isooctan). Một vài sản phẩm hydrocacbon khác mà có thể được tổng hợp bằng phương pháp trực tiếp bao gồm olefin (tức là, alken, như, ví dụ, etylen, propylen, 1-buten, 2-buten, 2-metyl-1-propen, 2-metyl-2-buten, xyclobuten, và xyclopenten) và các hợp chất thơm (ví dụ, benzen, toluen, xylen, styren, và naphtalen).

Nguyên liệu hydrocacbon đặc biệt được xem xét ở đây là hỗn hợp các hợp chất hydrocacbon trực tiếp hữu dụng làm nhiên liệu hoặc làm chất bổ sung hoặc thành phần của nhiên liệu. Theo một vài phương án, nguyên liệu hydrocacbon được sản xuất ở đây hầu như tương ứng (ví dụ, về thành phần và/hoặc đặc tính) với nhiên liệu hóa dầu đã biết, như dầu mỏ, hoặc phần cất phân đoạn dầu mỏ. Một vài ví dụ về nhiên liệu hóa dầu bao gồm xăng, kerosen, điezen, và nhiên liệu phản lực (ví dụ, JP-8). Theo các phương án khác, nguyên liệu hydrocacbon được sản xuất ở đây được trộn với nguyên liệu hoặc nhiên liệu hydrocacbon khác (ví dụ, xăng) được sản xuất bằng phương pháp này hoặc phương pháp khác trong lĩnh vực này nhằm nỗ lực

tạo ra sản phẩm nhiên liệu cuối cùng có các đặc tính kết hợp (ví dụ, lượng etylen tương đối thấp và lượng các hợp chất thơm thấp, hoặc lượng etylen tương đối thấp và lượng các hợp chất thơm cao, hoặc lượng etylen tương đối cao và lượng các hợp chất thơm thấp, hoặc lượng etylen và các hợp chất thơm tương đối cao). Lượng etylen thấp thường tương ứng với lượng etylen nhỏ hơn 1%, hoặc tối đa hoặc nhỏ hơn 0,9%, 0,8%, 0,7%, 0,6%, 0,5%, 0,4%, 0,3%, hoặc 0,2% (thể tích/thể tích). Lượng etylen cao thường tương ứng với lượng etylen lớn hơn 1%, hoặc ít nhất hoặc lớn hơn 1,5%, 2%, 2,5%, 3%, 3,5%, 4%, 4,5%, 5%, 6%, 7%, 8%, 9%, hoặc 10%. Lượng các hợp chất thơm thấp thường tương ứng với lượng các hợp chất thơm tối đa là hoặc nhỏ hơn 40%, 35%, 30%, 25%, 20%, 15%, hoặc 10%. Lượng hợp chất thơm cao thường tương ứng với lượng các hợp chất thơm ít nhất bằng hoặc lớn hơn 45%, 50%, 55%, 60%, 65%, 70%, hoặc 75%. Theo một vài phương án, nguyên liệu hydrocacbon được sản xuất trực tiếp từ phương pháp chuyển hóa rượu (tức là, không trộn với nguyên liệu hoặc nhiên liệu khác và không xử lý thêm, như quy trình chưng cất) có thể có một hoặc nhiều trong số các lượng etylen và/hoặc hợp chất thơm nêu trên. Theo các phương án khác, có viện dẫn cụ thể đến benzen, nguyên liệu hydrocacbon có thể có lượng benzen bằng tối đa hoặc nhỏ hơn 5%, 4%, 3%, 2%, 1%, 0,5%, 0,4%, hoặc 0,3% (thể tích/thể tích).

Giống như các loại nhiên liệu hydrocacbon sử dụng hiện nay, hỗn hợp chứa các hợp chất hydrocacbon được sản xuất ở đây có thể, theo một vài phương án, chủ yếu hoặc chỉ bao gồm các alkan, các alken, các hợp chất thơm, hoặc hỗn hợp của chúng. Mặc dù etylen và các hợp chất thơm (cụ thể là benzen) có thể có mặt trong nguyên liệu hydrocacbon, song có thể làm giảm sự có mặt của chúng theo các tiêu chuẩn về nhiên liệu hiện nay. Lượng tương đối của etylen và/hoặc các hợp chất thơm trong nguyên liệu hydrocacbon được sản xuất có thể được làm giảm thích hợp bằng cách chưng cất hoặc cất phân đoạn chẳng hạn. Cất phân đoạn cũng có thể dùng để sản xuất các loại nhiên liệu khác nhau, mỗi loại nhiên liệu này được biết đến là nằm trong khoảng điểm sôi nhất định. Một ưu điểm đặc biệt của phương pháp hiện nay là khả năng sản xuất các loại nhiên liệu này của nó hầu như không có mặt các tạp chất (ví dụ, mercaptan) thường cần phải loại bỏ trong quá trình tinh chế

dầu mỏ. Hơn thế nữa, bằng cách điều chỉnh thích hợp các điều kiện xử lý và xúc tác, sự phân bố chọn lọc của các hydrocacbon có thể đạt được.

Tốt hơn là, thành phần một hoặc nhiều rượu trong nguyên liệu rượu cũng có thể được chọn thích hợp hoặc được tối ưu hóa để sản xuất nguyên liệu hydrocacbon có lượng etylen tối ưu hoặc mong muốn, lượng các hợp chất thơm (ví dụ, benzen), định mức octan, và các tỷ lệ khối lượng tương đối của hydrocacbon dựa trên số nguyên tử cacbon. Cụ thể là, hỗn hợp các rượu có thể được sử dụng để tạo ra tổ hợp các dấu hiệu mà không có được khi sử dụng một rượu. Ví dụ, một rượu mà có lượng etylen thấp và lượng các hợp chất thơm cao thích hợp có thể được trộn với một rượu khác mà có lượng etylen cao hơn và lượng các hợp chất thơm thấp hơn với tỷ lệ thích hợp để sản xuất nguyên liệu hydrocacbon có lượng etylen và các hợp chất thơm tối ưu hơn.

Theo một vài phương án, lượng các hợp chất thơm (hoặc cụ thể hơn là, lượng benzen) trong nguyên liệu hydrocacbon được giảm bằng phản ứng hóa học, ví dụ bằng cách hydro hóa hoặc alkyl hóa một phần, như đã biết rõ trong lĩnh vực kỹ thuật này, để thu được lượng các chất thơm (hoặc benzen) nằm trong khoảng giới hạn quy định. Ở Mỹ, cơ quan bảo vệ môi trường (Environmental Protection Agency-EPA) gần đây đã quy định mức giới hạn của benzen là 0,62% thể tích. Do đó, nguyên liệu hydrocacbon thu được có thể được điều chỉnh để thu được lượng benzen tối đa là hoặc nhỏ hơn 0,62% thể tích, đặc biệt là nếu nó được sử dụng trực tiếp làm nhiên liệu. Trong trường hợp alkyl hóa, nguyên liệu hydrocacbon được tổng hợp bằng phương pháp được mô tả ở đây có thể được xử lý bằng chất xúc tác alkyl hóa bất kỳ trong số các chất xúc tác alkyl hóa đã biết trong lĩnh vực kỹ thuật này, kể cả các chất xúc tác alkyl hóa zeolit và các chất xúc tác loại Friedel-Crafts.

Tùy thuộc vào thành phần cuối cùng của sản phẩm hydrocacbon, sản phẩm này có thể được sử dụng cho nhiều mục đích khác nhau ngoài mục đích sử dụng làm nhiên liệu. Một vài ứng dụng khác bao gồm, ví dụ, làm tiền chất để sản xuất nhựa, polyme, và các hóa chất mịn. Tốt hơn là quy trình được mô tả ở đây có thể sản xuất một loạt các sản phẩm hydrocacbon mà khác nhau ở đặc tính bất kỳ trong số nhiều đặc tính, như khối lượng phân tử (tức là, sự phân bố khối lượng hydrocacbon), mức no hoặc không no (ví dụ, tỷ lệ alkan so với alken), và lượng các



chất đồng phân mạch nhánh hoặc đồng phân mạch vòng. Quy trình này tạo ra sản phẩm có tính đa dụng bằng cách chọn lọc thích hợp, ví dụ, thành phần rượu, thành phần chất xúc tác (kể cả chọn kim loại xúc tác), lượng chất xúc tác (ví dụ, tỷ lệ chất xúc tác so với tiền chất rượu), nhiệt độ xử lý, và tốc độ dòng chảy (ví dụ, LHSV).

Theo các phương án khác, rượu hoặc hỗn hợp của chúng được sử dụng trong phản ứng chuyển hóa được chọn để sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa các hydrocacbon có ít nhất 6, 7, 8, 9, hoặc 10 nguyên tử cacbon với lượng tương đối ít nhất là 30%, 35%, 40%, 45%, 50%, 55%, 60%, 65%, 70%, hoặc 75% (thể tích/thể tích). Tốt hơn nếu rượu hoặc hỗn hợp của chúng đạt được mức phân bố khối lượng bất kỳ trong số các mức phân bố khối lượng trên đây của các hydrocacbon cùng với lượng etylen được ưu tiên bất kỳ nêu trên, cụ thể là lượng etylen nhỏ hơn 1% hoặc 0,5%. Theo các phương án được ưu tiên khác, rượu hoặc hỗn hợp của chúng tạo ra mức phân bố khối lượng bất kỳ trong số các mức phân bố khối lượng nêu trên của các hydrocacbon cùng với tối đa hoặc nhỏ hơn 10%, 9%, 8%, 7%, 6%, 5%, 4%, hoặc 3% các hợp chất hydrocacbon có ba nguyên tử cacbon hoặc tổng số các hợp chất hydrocacbon có hai hoặc ba nguyên tử cacbon.

Trong quy trình này, nhiệt độ phản ứng thích hợp được sử dụng khi cho rượu tiếp xúc với chất xúc tác. Thông thường, nhiệt độ phản ứng ít nhất là 100°C và tối đa là 550°C. Theo các phương án khác, nhiệt độ phản ứng chính xác là hoặc bằng khoảng, ví dụ, 100°C, 125°C, 150°C, 175°C, 200°C, 225°C, 250°C, 275°C, 300°C, 325°C, 350°C, 375°C, 400°C, 425°C, 450°C, 475°C, 500°C, 525°C, hoặc 550°C, hoặc nhiệt độ nằm trong khoảng được giới hạn bởi hai trong số các nhiệt độ được lấy làm ví dụ nêu trên (ví dụ, 100°C - 550°C, 200°C - 550°C, 300°C - 550°C, 400°C - 550°C, 450°C - 550°C, 100°C - 500°C, 200°C - 500°C, 300°C - 500°C, 350°C - 500°C, 400°C - 500°C, 450°C - 500°C, 100°C - 450°C, 200°C - 450°C, 300°C - 450°C, 350°C - 450°C, 400°C - 450°C, 100°C - 425°C, 200°C - 425°C, 300°C - 425°C, 350°C - 425°C, 375°C - 425°C, 400°C - 425°C, 100°C - 400°C, 200°C - 400°C, 300°C - 400°C, 350°C - 400°C, và 375°C - 400°C).

Nói chung, áp suất của môi trường xung quanh (tức là, áp suất khí quyển bình thường) khoảng 1atm được sử dụng trong phương pháp được mô tả ở đây. Tuy nhiên, theo một vài phương án, có thể tăng hoặc giảm áp suất. Ví dụ, theo một vài

phương án, áp suất có thể được tăng đến, ví dụ, 1,5, 2, 3, 4, hoặc 5atm, hoặc được làm giảm đến, ví dụ, 0,5, 0,2, hoặc 0,1atm.

Chất xúc tác và thùng phản ứng có thể có thiết kế bất kỳ trong số các thiết kế đã biết trong lĩnh vực này để xử lý có xúc tác dịch lỏng hoặc khí ở nhiệt độ cao, như thùng phản ứng tầng sôi. Quy trình này có thể hoạt động theo kiểu liên tục hoặc gián đoạn. Theo các phương án cụ thể, rượu được cho vào thùng phản ứng đã gia nhiệt sao cho rượu được bay hơi nhanh thành khí, và cho khí này đi qua chất xúc tác. Theo một vài phương án, thiết kế thùng phản ứng bao gồm thiết bị nổi hơi và thiết bị thùng phản ứng nếu dòng lên men được sử dụng trực tiếp làm nguyên liệu mà không cần tinh chế. Thiết bị nổi hơi thường không cần thiết nếu dòng lên men được chưng cất để thu được rượu bởi vì quy trình chưng cất loại bỏ các chất rắn không hòa tan trong dòng lên men. Thiết bị nổi hơi làm bay hơi nguyên liệu lỏng thành khí trước khi đi vào thiết bị thùng phản ứng và giữ lại các chất rắn được hòa tan.

Theo một vài phương án, phương pháp chuyển hóa được mô tả trên đây được kết hợp với quy trình lên men, trong đó quy trình lên men này sản xuất rượu dùng làm nguyên liệu cho quy trình chuyển hóa. Thuật ngữ “được kết hợp” có nghĩa là rượu được sản xuất trong thiết bị hoặc khu lên men được chuyển sang và được xử lý trong thiết bị hoặc khu chuyển hóa (mà tiến hành quy trình chuyển hóa nêu trên). Tốt hơn là, để làm giảm các chi phí sản xuất, quy trình lên men được bố trí đủ gần với thiết bị hoặc khu chuyển hóa, hoặc bao gồm các ống dẫn thích hợp để chuyển rượu đã sản xuất đến thiết bị hoặc khu chuyển hóa, nhờ đó không cần vận chuyển rượu. Theo các phương án cụ thể, dòng lên men được sản xuất trong thiết bị lên men được chuyển trực tiếp sang thiết bị chuyển hóa, thường được loại bỏ các chất rắn ra khỏi dòng thô (bằng cách lọc hoặc để lắng) trước khi cho dòng này tiếp xúc với chất xúc tác.

Theo một vài phương án, quy trình lên men được tiến hành trong thiết bị lên men tự quản, tức là nơi mà sacarit, được tổng hợp ở nơi khác, được chuyển về thiết bị lên men để sản xuất rượu. Theo các phương án khác, quy trình lên men là một phần của thiết bị phản ứng sinh khối lớn, tức là, trong đó sinh khối được phân hủy thành các sacarit lên men được, mà sau đó được xử lý ở khu lên men. Các thùng

phản ứng sinh khối và các thiết bị lên men là đã biết rõ trong lĩnh vực kỹ thuật này. Sinh khối thường được dùng để chỉ chất lignoxenluloza (tức là, một nguyên liệu có nguồn gốc thực vật), như gỗ, cỏ, lá, giấy, lá bao bắp ngô, cây mía, bã mía, và vỏ quả hạch. Nói chung, quy trình chuyển hóa sinh khối thành etanol được thực hiện bằng các bước 1) xử lý sơ bộ sinh khối trong các điều kiện đã biết rõ để tách nguyên liệu lignin và hemixenluloza khỏi nguyên liệu xenluloza, 2) phân cắt nguyên liệu xenluloza thành nguyên liệu sacarit lên men được nhờ tác động của enzym xenlulaza, và 3) lên men nguyên liệu sacarit, thông thường nhờ tác động của vi sinh vật lên men, như nấm men.

Theo các phương án khác, rượu được sản xuất từ nguồn đường trực tiếp, như nguồn đường trên cơ sở thực vật, như cây mía hoặc tinh bột gạo (như tinh bột ngô). Sản xuất etanol bằng tinh bột ngô (tức là, etanol từ tinh bột ngô) và bằng cây mía (tức là, etanol từ cây mía) hiện đại diện cho một vài phương pháp sản xuất etanol có quy mô thương mại lớn nhất. Các quy trình lên men ở quy mô lớn này cũng có thể sản xuất rượu  $C_{3+}$ , cụ thể là butanol và/hoặc isobutanol. Việc kết hợp quy trình chuyển hóa tức thì với phương pháp bất kỳ trong số nhiều phương pháp sản xuất rượu quy mô lớn này được mô tả ở đây.

Chất xúc tác chuyển hóa được sử dụng ở đây bao gồm một phần zeolit và kim loại được mang trong zeolit. Zeolit được đề cập ở đây có thể là cấu trúc bất kỳ trong số các cấu trúc nhôm silicat xốp đã biết trong lĩnh vực kỹ thuật này mà ổn định trong các điều kiện nhiệt độ cao, tức là, ít nhất là  $100^{\circ}\text{C}$ ,  $150^{\circ}\text{C}$ ,  $200^{\circ}\text{C}$ ,  $250^{\circ}\text{C}$ ,  $300^{\circ}\text{C}$ , và các nhiệt độ cao hơn lên đến, ví dụ,  $500^{\circ}\text{C}$ ,  $550^{\circ}\text{C}$ ,  $600^{\circ}\text{C}$ ,  $650^{\circ}\text{C}$ ,  $700^{\circ}\text{C}$ ,  $750^{\circ}\text{C}$ ,  $800^{\circ}\text{C}$ ,  $850^{\circ}\text{C}$ , hoặc  $900^{\circ}\text{C}$ . Theo các phương án cụ thể, zeolit ổn định ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ ít nhất  $100^{\circ}\text{C}$  đến tối đa là  $700^{\circ}\text{C}$ . Thông thường, zeolit được sử dụng nhờ có cấu trúc tinh thể hoặc tinh thể một phần. Zeolit thường được mô tả là một cấu trúc ba chiều chứa silicat ( $\text{SiO}_2$  hoặc  $\text{SiO}_4$ ) và aluminat ( $\text{Al}_2\text{O}_3$  hoặc  $\text{AlO}_4$ ) mà được liên kết tương hỗ (tức là, được liên kết ngang) thông qua nguyên tử oxy.

Zeolit có thể có cấu trúc xốp mịn (tức là, cỡ lỗ nhỏ hơn  $2\mu\text{m}$ ), xốp cỡ trung bình (tức là, cỡ lỗ nằm trong khoảng từ 2 đến  $50\mu\text{m}$ , hoặc khoảng con trong đó), hoặc cấu trúc kết hợp của chúng. Theo một vài phương án, nguyên liệu zeolit có thể

có cấu trúc xốp mịn một phần hoặc xốp mịn hoàn toàn. Nếu là cấu trúc xốp mịn một phần hoặc hoàn toàn, thể tích lỗ của cấu trúc lỗ xốp mịn có thể là, ví dụ, 100%, hoặc ít nhất 95%, 96%, 97%, 98%, 99%, hoặc 99,5%, và thể tích lỗ còn lại là của lỗ xốp cỡ trung bình, hoặc theo một vài phương án, lỗ xốp lớn (cỡ lỗ lớn hơn 50 $\mu$ m). Theo các phương án khác, nguyên liệu zeolit có cấu trúc xốp cỡ trung bình một phần hoặc hoàn toàn. Nếu là cấu trúc xốp cỡ trung bình một phần hoặc hoàn toàn, thể tích lỗ của lỗ xốp cỡ trung bình có thể là, ví dụ, 100%, hoặc ít nhất 95%, 96%, 97%, 98%, 99%, hoặc 99,5%, và thể tích lỗ còn lại là của lỗ xốp mịn, hoặc theo một vài phương án, là của lỗ xốp lớn. Theo các phương án khác nữa, nguyên liệu zeolit có nhiều cả lỗ xốp mịn và lỗ xốp cỡ trung bình. Nhờ có nhiều cả lỗ xốp mịn và lỗ xốp cỡ trung bình, nên thể tích lỗ do lỗ xốp cỡ trung bình có thể là, ví dụ, tối đa, ít nhất, hoặc chính xác là 50%, 60%, 70%, 80%, hoặc 90%, và thể tích lỗ còn lại là của lỗ xốp mịn, hoặc ngược lại.

Theo nhiều phương án khác, zeolit là zeolit loại MFI, zeolit loại MEL, zeolit loại MTW, zeolit loại MCM, zeolit loại BEA, kaolin, hoặc zeolit loại faujasit. Một vài ví dụ cụ thể về zeolit bao gồm zeolit loại ZSM (ví dụ, ZSM-5, ZSM-8, ZSM-11, ZSM-12, ZSM-15, ZSM-23, ZSM-35, ZSM-38, ZSM-48), zeolit X, zeolit Y, zeolit beta, và zeolit loại MCM (ví dụ, MCM-22 và MCM-49). Thành phần, cấu trúc và đặc tính của các zeolit này là đã biết rõ trong lĩnh vực này, và đã được mô tả chi tiết, như được tìm thấy trong tài liệu, ví dụ, các patent Mỹ số 4,721,609, 4,596,704, 3,702,886, 7,459,413, và 4,427,789, các tài liệu này được đưa vào đây bằng cách viện dẫn.

Zeolit có thể có tỷ lệ silic oxit so với nhôm oxit thích hợp bất kỳ (tức là, SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> hoặc "Si/Al"). Ví dụ, theo nhiều phương án khác, zeolit có thể có tỷ lệ Si/Al chính xác bằng, ít nhất bằng, nhỏ hơn, hoặc tối đa bằng 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 75, 80, 85, 90, 95, 100, 120, 150, hoặc 200, hoặc tỷ lệ Si/Al nằm trong khoảng được giới hạn bởi hai giá trị bất kỳ trong số các giá trị nêu trên. Theo các phương án cụ thể, zeolit có tỷ lệ Si/Al bằng 1:45.

Theo các phương án cụ thể, zeolit là ZSM-5. ZSM-5 thuộc nhóm zeolit chứa pentasil, cũng được xem xét ở đây. Theo các phương án cụ thể, zeolit ZSM-5 có công thức  $\text{Na}_n\text{Al}_n\text{Si}_{96-n}\text{O}_{192}\cdot 16\text{H}_2\text{O}$ , trong đó  $0 < n < 27$ .

Thông thường, zeolit chứa một lượng loại cation. Như đã biết rõ trong lĩnh vực này, lượng loại cation này thường tỷ lệ với lượng nhôm trong zeolit. Điều này là do sự thay thế các nguyên tử silic bằng các nguyên tử nhôm hóa trị thấp hơn đòi hỏi sự có mặt của các cation đối để tạo ra sự cân bằng điện tích. Một vài ví dụ về loại cation này bao gồm các ion hydro ( $\text{H}^+$ ), các ion kim loại kiềm, các ion kim loại kiềm thổ, và các ion kim loại nhóm chính. Một vài ví dụ về các ion kim loại kiềm mà có thể có trong zeolit bao gồm lithi ( $\text{Li}^+$ ), natri ( $\text{Na}^+$ ), kali ( $\text{K}^+$ ), rubiđi ( $\text{Rb}^+$ ), và xesi ( $\text{Cs}^+$ ). Một vài ví dụ về các ion kim loại kiềm thổ mà có thể có trong zeolit bao gồm ( $\text{Be}^{2+}$ ), magie ( $\text{Mg}^{2+}$ ), canxi ( $\text{Ca}^{2+}$ ), stronti ( $\text{Sr}^{2+}$ ), và bari ( $\text{Ba}^{2+}$ ). Một vài ví dụ về các ion kim loại nhóm chính mà có thể được bao gồm trong zeolit bao gồm bo ( $\text{B}^{3+}$ ), gali ( $\text{Ga}^{3+}$ ), inđi ( $\text{In}^{3+}$ ), và asen ( $\text{As}^{3+}$ ). Theo một vài phương án, tổ hợp các loại cation được bao gồm. Các loại cation có thể có mặt với lượng vi lượng (ví dụ, không quá 0,01 hoặc 0,001%), hoặc theo cách khác, với lượng đáng kể (ví dụ, trên 0,01%, và tối đa là, ví dụ, 0,1, 0,5, 1, 2, 3, 4, hoặc 5% khối lượng zeolit). Theo một vài phương án, một hoặc nhiều nhóm nêu trên hoặc các ví dụ cụ thể về các loại cation được loại khỏi zeolit.

Zeolit được mô tả trên đây được mang kim loại xúc tác ở nồng độ hữu hiệu để xúc tác. Kim loại được mang trong zeolit được chọn sao cho zeolit được mang kim loại thu được có hoạt tính xúc tác, trong các điều kiện nêu trên, để chuyển hóa rượu thành hydrocacbon. Thông thường, kim loại được đề cập ở đây là ở dạng ion kim loại mang điện tích dương (tức là, các cation kim loại). Các cation kim loại có thể có, ví dụ, hóa trị một, hóa trị hai, hóa trị ba, hóa trị bốn, hóa trị năm hoặc hóa trị sáu. Theo một vài phương án, kim loại này là (hoặc bao gồm) các ion kim loại kiềm. Theo các phương án khác, kim loại này là (hoặc bao gồm) ion kim loại kiềm thổ. Theo các phương án khác, kim loại này là (hoặc bao gồm) kim loại chuyển tiếp, như một hoặc nhiều kim loại chuyển tiếp dãy thứ nhất, thứ hai hoặc thứ ba. Một vài kim loại chuyển tiếp được ưu tiên bao gồm đồng, sắt, kẽm, titan, vanadi, và cadimi. Ion đồng có thể là đồng (I) ( $\text{Cu}^{+1}$ ) hoặc đồng (II) ( $\text{Cu}^{+2}$ ) trong tự nhiên, và các

nguyên tử sắt có thể là sắt (II) ( $\text{Fe}^{+2}$ ) hoặc sắt (III) ( $\text{Fe}^{+3}$ ) trong tự nhiên. Các ion vanadi có thể ở trạng thái bất kỳ trong số các trạng thái oxy hóa đã biết của nó, ví dụ,  $\text{V}^{+2}$ ,  $\text{V}^{+3}$ ,  $\text{V}^{+4}$ , và  $\text{V}^{+5}$ . Theo các phương án khác, kim loại là (hoặc bao gồm) kim loại thuộc nhóm chính có hoạt tính xúc tác, như gali hoặc indi. Kim loại đơn hoặc hỗn hợp kim loại có thể được mang trong zeolit. Theo các phương án khác, một hoặc nhiều kim loại bất kỳ nêu trên được loại khỏi zeolit.

Lượng mang kim loại có thể là lượng thích hợp bất kỳ, nhưng thường không quá 2,5%, trong đó lượng mang kim loại được biểu hiện dưới dạng lượng kim loại tính theo khối lượng zeolit. Theo các phương án khác, lượng mang kim loại chính xác là, ít nhất là, nhỏ hơn hoặc tối đa là, ví dụ, 0,01%, 0,02%, 0,03%, 0,04%, 0,05%, 0,06%, 0,07%, 0,08%, 0,09%, 1,0%, 1,1%, 1,2%, 1,3%, 1,4%, 1,5%, 1,6%, 1,7%, 1,8%, 1,9%, 2,0%, 2,1%, 2,2%, 2,3%, 2,4%, hoặc 2,5%, hoặc lượng mang kim loại nằm trong khoảng được giới hạn bởi hai giá trị bất kỳ trong số các giá trị nêu trên.

Theo các khía cạnh khác của sáng chế, chất xúc tác zeolit có thể bao gồm ít nhất một ion kim loại hóa trị ba ngoài một hoặc nhiều kim loại nêu trên. Như được sử dụng ở đây, thuật ngữ "ion kim loại hóa trị ba" được xác định là ion kim loại hóa trị ba ngoài nhôm ( $\text{Al}^{+3}$ ). Không mong muốn bị giới hạn bởi lý thuyết bất kỳ, được tin rằng kim loại hóa trị ba được kết hợp vào cấu trúc zeolit. Cụ thể hơn là, ion kim loại hóa trị 3 được kết hợp được tin là được gắn với một số nguyên tử oxy thích hợp trong zeolit, tức là, ở dạng đơn vị oxit kim loại chứa cation kim loại được liên kết với cấu trúc này thông qua các cầu nối oxy. Theo một vài phương án, sự có mặt của ion kim loại hóa trị ba kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại có hoạt tính xúc tác khác có thể thu được tác động kết hợp khác với tác động tích lũy của các ion này khi sử dụng từng ion. Tác động được xem xét chủ yếu là khả năng của chất xúc tác thu được trong việc chuyển hóa các rượu thành hydrocacbon.

Theo một vài phương án, chỉ một loại ion kim loại hóa trị ba ngoài nhôm được kết hợp vào zeolit. Theo các phương án khác, ít nhất hai loại ion kim loại hóa trị ba ngoài nhôm được kết hợp vào zeolit. Theo các phương án khác nữa, ít nhất ba loại ion kim loại hóa trị ba ngoài nhôm được kết hợp vào zeolit. Theo các phương

án khác, chính xác là hai hoặc ba loại ion kim loại hóa trị ba ngoài nhôm được kết hợp vào zeolit.

Mỗi ion kim loại hóa trị ba có thể được kết hợp với lượng thích hợp bất kỳ, như, chính xác là, ít nhất là, nhỏ hơn, hoặc tối đa, ví dụ, 0,01%, 0,02%, 0,03%, 0,04%, 0,05%, 0,06%, 0,07%, 0,08%, 0,09%, 1,0%, 1,1%, 1,2%, 1,3%, 1,4%, 1,5%, 1,6%, 1,7%, 1,8%, 1,9%, 2,0%, 2,1%, 2,2%, 2,3%, 2,4%, hoặc 2,5%, hoặc một lượng nằm trong khoảng được giới hạn bởi hai giá trị bất kỳ trong số các giá trị nêu trên. Theo cách khác, tổng lượng ion kim loại hóa trị ba (ngoài Al) có thể được giới hạn ở giá trị bất kỳ trong số các giá trị nêu trên. Theo một vài phương án, một hoặc nhiều loại cụ thể, hoặc tất cả, các ion kim loại hóa trị ba ngoài Al được loại khỏi chất xúc tác.

Theo phương án thứ nhất, ít nhất một ion kim loại hóa trị ba được chọn từ các ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba. Một hoặc nhiều kim loại chuyển tiếp có thể được chọn từ một phần bất kỳ hoặc phần chọn lọc của các loại kim loại chuyển tiếp dưới đây: các nguyên tố thuộc nhóm IIIB (nhóm Sc), IVB (nhóm Ti), VB (nhóm V), VIB (nhóm Cr), VIIB (nhóm Mn), VIIIB (nhóm Fe và Co) của bảng tuần hoàn các nguyên tố. Một vài ví dụ về các ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba bao gồm  $\text{Sc}^{+3}$ ,  $\text{Y}^{+3}$ ,  $\text{V}^{+3}$ ,  $\text{Nb}^{+3}$ ,  $\text{Cr}^{+3}$ ,  $\text{Fe}^{+3}$ , và  $\text{Co}^{+3}$ . Theo các phương án cụ thể, các ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba bao gồm  $\text{Sc}^{+3}$ , hoặc  $\text{Fe}^{+3}$ , hoặc tổ hợp của chúng. Theo các phương án khác, ion kim loại hóa trị ba ngoại trừ các ion kim loại chuyển tiếp, hoặc theo cách khác, loại trừ một, hai, hoặc nhiều loại hoặc ví dụ cụ thể về ion kim loại chuyển tiếp được đề cập trên đây.

Theo một phương án thứ hai, ít nhất một ion kim loại hóa trị ba được chọn từ các ion kim loại nhóm chính hóa trị ba. Một hoặc nhiều kim loại nhóm chính có thể được chọn từ phần bất kỳ hoặc phần chọn lọc của các nguyên tố thuộc nhóm IIIA (nhóm B) và/hoặc nhóm VA (nhóm N) của bảng tuần hoàn, ngoài nhôm. Một vài ví dụ về các ion kim loại nhóm chính hóa trị ba bao gồm  $\text{Ga}^{+3}$ ,  $\text{In}^{+3}$ ,  $\text{As}^{+3}$ ,  $\text{Sb}^{+3}$ , và  $\text{Bi}^{+3}$ . Theo các phương án cụ thể, các ion kim loại nhóm chính hóa trị ba bao gồm ít nhất là  $\text{In}^{3+}$ . Theo các phương án cụ thể, ion kim loại hóa trị ba ngoại trừ tất cả các ion kim loại nhóm chính ngoài nhôm, hoặc theo cách khác, ngoại trừ một, hai hoặc nhiều nhóm bất kỳ hoặc ví dụ cụ thể về các ion kim loại nhóm chính nêu trên.

Theo phương án thứ ba, ít nhất một ion kim loại hóa trị ba được chọn từ các ion kim loại lanthanit hóa trị ba. Một vài ví dụ về các ion kim loại lanthanit hóa trị ba được đề cập ở đây bao gồm  $\text{La}^{+3}$ ,  $\text{Ce}^{+3}$ ,  $\text{Pr}^{+3}$ ,  $\text{Nd}^{+3}$ ,  $\text{Sm}^{+3}$ ,  $\text{Eu}^{+3}$ ,  $\text{Gd}^{+3}$ ,  $\text{Tb}^{+3}$ ,  $\text{Dy}^{+3}$ ,  $\text{Ho}^{+3}$ ,  $\text{Er}^{+3}$ ,  $\text{Tm}^{+3}$ ,  $\text{Yb}^{+3}$ , và  $\text{Lu}^{+3}$ . Theo các phương án cụ thể, ion kim loại lanthanit hóa trị ba được chọn từ một trong số hoặc hỗn hợp của  $\text{La}^{+3}$ ,  $\text{Ce}^{+3}$ ,  $\text{Pr}^{+3}$ , và  $\text{Nd}^{+3}$ . Theo các phương án cụ thể khác, ion kim loại lanthanit hóa trị ba là hoặc bao gồm  $\text{La}^{+3}$ . Theo các phương án khác, ion kim loại hóa trị ba ngoại trừ tất cả các ion kim loại lanthanit, hoặc theo cách khác, ngoại trừ một, hai hoặc nhiều nhóm hoặc ví dụ cụ thể về các ion kim loại lanthanit nêu trên.

Theo phương án thứ tư, chất xúc tác bao gồm ít nhất hai ion kim loại hóa trị ba được chọn từ các ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba. Một vài tổ hợp của các ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba được đề cập ở đây bao gồm  $\text{Sc}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba khác, hoặc  $\text{Fe}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba khác, hoặc  $\text{Y}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba khác, hoặc  $\text{V}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba khác.

Theo phương án thứ năm, chất xúc tác này bao gồm ít nhất hai ion kim loại hóa trị ba được chọn từ các ion kim loại nhóm chính hóa trị ba. Một vài tổ hợp của các ion kim loại nhóm chính hóa trị 3 được xem xét ở đây bao gồm  $\text{In}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại nhóm chính hóa trị ba khác, hoặc  $\text{Ga}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại nhóm chính hóa trị ba khác, hoặc  $\text{As}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại nhóm chính hóa trị ba khác.

Theo phương án thứ sáu, chất xúc tác bao gồm ít nhất hai ion kim loại hóa trị ba được chọn từ các ion kim loại lanthanit hóa trị ba. Một vài tổ hợp của các ion kim loại lanthanit hóa trị ba được đề cập ở đây bao gồm  $\text{La}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại lanthanit hóa trị ba khác, hoặc  $\text{Ce}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại lanthanit hóa trị ba khác, hoặc  $\text{Pr}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại lanthanit hóa trị ba khác, hoặc  $\text{Nd}^{+3}$  kết hợp với một hoặc nhiều ion kim loại lanthanit hóa trị ba khác.

Theo phương án thứ bảy, chất xúc tác bao gồm ít nhất một ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba và ít nhất một ion kim loại lanthanit hóa trị ba. Ví dụ, theo các



phương án cụ thể, ít nhất một ion kim loại hóa trị ba được chọn từ  $\text{Sc}^{+3}$ ,  $\text{Fe}^{+3}$ ,  $\text{V}^{+3}$ , và/hoặc  $\text{Y}^{+3}$ , và ion kim loại hóa trị ba khác được chọn từ  $\text{La}^{+3}$ ,  $\text{Ce}^{+3}$ ,  $\text{Pr}^{+3}$ , và/hoặc  $\text{Nd}^{+3}$ .

Theo phương án thứ tám, chất xúc tác bao gồm ít nhất một ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba và ít nhất một ion kim loại nhóm chính hóa trị ba. Ví dụ, theo các phương án cụ thể, ít nhất một ion kim loại hóa trị ba được chọn từ  $\text{Sc}^{+3}$ ,  $\text{Fe}^{+3}$ ,  $\text{V}^{+3}$ , và/hoặc  $\text{Y}^{+3}$ , và ion kim loại hóa trị ba khác được chọn từ  $\text{In}^{+3}$ ,  $\text{Ga}^{+3}$ , và/hoặc  $\text{In}^{+3}$ .

Theo phương án thứ chín, chất xúc tác bao gồm ít nhất một ion kim loại nhóm chính hóa trị ba và ít nhất một ion kim loại lantanit hóa trị ba. Ví dụ, theo các phương án cụ thể, ít nhất một ion kim loại hóa trị ba được chọn từ  $\text{In}^{+3}$ ,  $\text{Ga}^{+3}$ , và/hoặc  $\text{In}^{+3}$ , và ion kim loại hóa trị ba khác được chọn từ  $\text{La}^{+3}$ ,  $\text{Ce}^{+3}$ ,  $\text{Pr}^{+3}$ , và/hoặc  $\text{Nd}^{+3}$ .

Theo phương án thứ mười, chất xúc tác bao gồm ít nhất ba ion kim loại hóa trị ba. Ít nhất ba ion kim loại hóa trị ba có thể được chọn từ các ion kim loại chuyển tiếp hóa trị ba, các ion kim loại nhóm chính hóa trị ba, và/hoặc các ion kim loại lantanit hóa trị ba.

Theo các phương án cụ thể, một, hai, ba, hoặc nhiều ion kim loại hóa trị ba được chọn từ  $\text{Sc}^{+3}$ ,  $\text{Fe}^{+3}$ ,  $\text{V}^{+3}$ ,  $\text{Y}^{+3}$ ,  $\text{La}^{+3}$ ,  $\text{Ce}^{+3}$ ,  $\text{Pr}^{+3}$ ,  $\text{Nd}^{+3}$ ,  $\text{In}^{+3}$ , và/hoặc  $\text{Ga}^{+3}$ . Theo các phương án cụ thể hơn nữa, một, hai, ba, hoặc nhiều ion kim loại hóa trị ba được chọn từ  $\text{Sc}^{+3}$ ,  $\text{Fe}^{+3}$ ,  $\text{V}^{+3}$ ,  $\text{La}^{+3}$ , và/hoặc  $\text{In}^{+3}$ .

Chất xúc tác zeolit nêu trên thường không được bao bằng một lớp hoặc màng chứa kim loại. Tuy nhiên, sáng chế cũng đề cập đến chất xúc tác zeolit được mô tả trên đây được bao lớp hoặc màng chứa kim loại miễn là lớp hoặc màng này không làm cản trở đáng kể chất xúc tác thực hiện chức năng hiệu quả như là chất xúc tác chuyển hóa, như được dự định ở đây. Nếu được bao, lớp hoặc màng này nằm trên bề mặt của zeolit. Theo một vài phương án, bề mặt của zeolit được dùng để chỉ bề mặt bên ngoài duy nhất (tức là, như được xác định bởi diện tích bao quanh bên ngoài của chất xúc tác zeolit), trong khi đó theo các phương án khác, bề mặt của zeolit được dùng để chỉ hoặc bao gồm cả bề mặt bên trong của zeolit, như các bề mặt trong các lỗ hoặc các kênh của zeolit. Lớp hoặc màng chứa kim loại có thể

dùng để điều chỉnh các đặc tính vật lý của chất xúc tác chẳng hạn, hiệu quả chất xúc tác, hoặc tính chọn lọc của chất xúc tác. Một vài ví dụ về các bề mặt chứa kim loại bao gồm oxit và/hoặc sulfua của các kim loại kiềm, kim loại kiềm thổ, và các kim loại nhóm chính hoặc chuyển tiếp hóa trị hai, miễn là các kim loại bề mặt này không tạp nhiễm sản phẩm hydrocacbon và không có hại với quy trình sản xuất.

Chất xúc tác được mô tả ở đây có thể được tổng hợp bằng phương pháp thích hợp bất kỳ đã biết trong lĩnh vực kỹ thuật này. Tốt hơn nếu phương pháp đề cập ở đây nên kết hợp các ion kim loại đồng nhất vào zeolit. Zeolit có thể là loại zeolit đơn lẻ, hoặc tổ hợp gồm các nguyên liệu zeolit khác nhau.

Theo các phương án cụ thể, chất xúc tác được mô tả ở đây được điều chế bằng cách, đầu tiên, tẩm zeolit với các kim loại được mang. Bước tẩm có thể được thực hiện bằng cách, ví dụ, xử lý zeolit bằng một hoặc nhiều dung dịch chứa các muối kim loại được mang. Bằng cách xử lý zeolit bằng dung dịch chứa kim loại, dung dịch chứa kim loại được cho tiếp xúc với zeolit sao cho dung dịch này hấp phụ vào zeolit, tốt hơn nếu hấp phụ vào toàn bộ thể tích của zeolit. Thông thường, khi điều chế chất xúc tác zeolit mang kim loại (ví dụ, ZSM-5 mang đồng hoặc mang vanadi, tức là, “Cu-ZSM-5” hoặc “V-ZSM-5”, tương ứng), dạng zeolit axit (tức là, H-ZSM5) hoặc muối amoni của nó (ví dụ,  $\text{NH}_4$ -ZSM-5) được sử dụng làm nguyên liệu ban đầu mà trên đó được tiến hành trao đổi với các ion kim loại (ví dụ, các ion đồng hoặc vanadi). Chi tiết về các quy trình trao đổi kim loại này là đã biết rõ trong lĩnh vực này.

Theo một phương án, bước tẩm được tiến hành bằng cách xử lý zeolit bằng dung dịch mà chứa tất cả các kim loại được mang. Theo phương án khác, bước tẩm được tiến hành bằng cách xử lý zeolit bằng hai hoặc nhiều dung dịch, trong đó các dung dịch khác nhau chứa các kim loại hoặc hỗn hợp các kim loại khác nhau. Mỗi bước xử lý zeolit bằng dung dịch tẩm tương ứng với bước tẩm riêng biệt. Thông thường, khi nhiều hơn một bước tẩm được tiến hành, thì bước sấy khô và/hoặc xử lý bằng nhiệt được tiến hành giữa các bước tẩm.

Dung dịch tẩm kim loại chứa ít nhất một hoặc nhiều ion kim loại được mang trong zeolit, cũng như là chất mang lỏng để phân phối các ion kim loại vào zeolit. Các ion kim loại thường ở dạng muối kim loại. Tốt hơn nếu muối kim loại hòa tan

hoàn toàn trong chất mang lỏng. Muối kim loại chứa một hoặc nhiều ion kim loại liên kết ion với một hoặc nhiều anion đối. Một hoặc nhiều ion kim loại bất kỳ nêu trên có thể được dùng làm phần ion kim loại. Anion đối có thể được chọn từ, ví dụ, halogenua ( $F^-$ ,  $Cl^-$ ,  $Br^-$ , hoặc  $I^-$ ), carboxylat (ví dụ, format, axetat, propionat, hoặc butyrat), sulfat, nitrat, phosphat, clorat, bromat, iodat, hydroxit,  $\beta$ -diketonat (ví dụ, axetylaxetonat), và dicarboxylat (ví dụ, oxalat, malonat, hoặc succinat).

Theo các phương án cụ thể, chất xúc tác này được điều chế bằng cách tạo huyền phù đặc chứa bột zeolit và các kim loại được kết hợp. Huyền phù đặc thu được được sấy và gia nhiệt để tạo thành bột. Sau đó, bột này được kết hợp với các chất kết dính hữu cơ và/hoặc vô cơ và được trộn ướt để tạo thành bột nhão. Bột nhão thu được có thể được tạo thành hình dạng mong muốn, ví dụ ép đùn thành các cấu trúc que, tổ ong, hoặc chong chóng. Sau đó, các cấu trúc ép đùn được sấy và gia nhiệt để tạo thành chất xúc tác cuối cùng. Theo các phương án khác, bột zeolit, kim loại, và các chất kết dính đều được kết hợp với nhau để tạo thành bột nhão, mà sau đó được ép đùn và gia nhiệt.

Sau khi tẩm zeolit, zeolit mang kim loại thường được sấy và/hoặc tiến hành bước xử lý nhiệt (ví dụ, bước gia nhiệt hoặc nung). Bước xử lý bằng nhiệt có tác dụng kết hợp vĩnh cửu các kim loại tẩm vào zeolit, ví dụ bằng cách thay thế  $Al^{+3}$  và/hoặc  $Si^{+4}$  và tạo liên kết kim loại-oxit trong nguyên liệu zeolit. Theo các phương án khác, bước xử lý nhiệt có thể được tiến hành ở nhiệt độ ít nhất là  $100^{\circ}C$ ,  $150^{\circ}C$ ,  $200^{\circ}C$ ,  $250^{\circ}C$ ,  $300^{\circ}C$ ,  $350^{\circ}C$ ,  $400^{\circ}C$ ,  $450^{\circ}C$ ,  $500^{\circ}C$ ,  $550^{\circ}C$ ,  $600^{\circ}C$ ,  $650^{\circ}C$ ,  $700^{\circ}C$ ,  $750^{\circ}C$ , hoặc  $800^{\circ}C$ , hoặc trong khoảng trong đó, trong khoảng thời gian, ví dụ, 15 phút, 30 phút, 1 giờ, 2 giờ, 6 giờ, 12 giờ, 24 giờ, 30 giờ, 36 giờ, hoặc 48 giờ, hoặc trong khoảng trong đó. Theo một vài phương án cụ thể, bước xử lý nhiệt được tiến hành ở nhiệt độ ít nhất là  $500^{\circ}C$  trong một khoảng thời gian ít nhất là hai giờ. Theo một vài phương án, bước xử lý nhiệt bao gồm bước thay đổi nhiệt độ từ nhiệt độ thấp hơn đến nhiệt độ cao hơn, và/hoặc từ nhiệt độ cao hơn xuống nhiệt độ thấp hơn. Ví dụ, bước xử lý nhiệt có thể bao gồm giai đoạn thay đổi nhiệt độ từ 100 đến  $700^{\circ}C$ , hoặc ngược lại, ở tốc độ 1, 2, 5, hoặc  $10^{\circ}C/phút$ .

Nói chung, một hoặc nhiều bước xử lý nhiệt để sản xuất chất xúc tác zeolit mang kim loại được tiến hành trong điều kiện áp suất khí quyển bình thường. Tuy

nhiên, theo một vài phương án, áp suất cao (ví dụ, trên 1atm và tối đa là 2, 5, hoặc 10atm) được sử dụng, trong khi đó theo các phương án khác, áp suất thấp (ví dụ, dưới 1, 0,5, hoặc 0,2atm) được sử dụng. Hơn thế nữa, mặc dù các bước xử lý nhiệt thường được tiến hành trong điều kiện áp suất không khí bình thường, theo một vài phương án, một lượng oxy tăng, một lượng oxy giảm, hoặc khí quyển trơ được sử dụng. Một vài khí mà có thể được bao gồm trong khí quyển xử lý bao gồm, ví dụ, oxy, nitơ, heli, argon, cacbon đioxit, và hỗn hợp của chúng.

Đối với mục đích đưa ra ví dụ mô tả rõ hơn, chất xúc tác Cu-ZSM-5 có thể được điều chế như sau: 2,664g đồng axetat hydrat (tức là,  $\text{Cu}(\text{OAc})_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) được hòa tan trong 600mL nước đã khử ion (0,015M), sau đó bổ sung 10,005g H-ZSM-5 zeolit. Huyền phù đặc được duy trì khuấy trong hai giờ ở nhiệt độ 50°C. Cu-ZSM-5 (có màu xanh) được thu gom bằng cách lọc sau khi làm nguội, rửa bằng nước đã khử ion, và được nung trong không khí ở nhiệt độ 500°C (10°C/phút) trong bốn giờ.

Sau đó, tiền chất Cu-ZSM-5 tạo thành được tiếp xúc với kim loại khác, như sắt. Ví dụ, Cu-Fe-ZSM-5 có thể được điều chế như sau: 5g Cu-ZSM-5 được tạo huyền phù trong dung dịch nước chứa 25mL 0,015M  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ , loại khí  $\text{N}_2$ , và duy trì khuấy trong hai giờ ở nhiệt độ 80°C. Chất rắn màu nâu được thu gom sau khi lọc, để lại dịch lọc trong và không màu. Sau đó, sản phẩm được nung trong không khí ở nhiệt độ 500°C (2°C/phút) trong hai giờ. Chất xúc tác Cu-Fe-ZSM-5 thu được thường chứa 2,4% Cu và 0,3% Fe. Nhiều kim loại khác có thể được mang trong zeolit bằng cách tương tự để tạo ra nhiều chất xúc tác mang kim loại khác nhau.

Nói chung, chất xúc tác zeolit được mô tả ở đây là ở dạng bột. Theo phương án thứ nhất, ít nhất một phần, hoặc toàn bộ, các hạt bột có cỡ nhỏ hơn micromet (tức là, các hạt cỡ nano). Các hạt cỡ nano có thể có cỡ hạt chính xác là, ít nhất là, tối đa là, hoặc nhỏ hơn, ví dụ, 1, 2, 5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90, 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400, 450, 500, 550, 600, 650, 700, 750, 800, 850, 900, hoặc 950 nanomet (nm), hoặc cỡ hạt nằm trong khoảng được giới hạn bởi hai giá trị bất kỳ trong số các giá trị nêu trên. Theo phương án thứ hai, ít nhất một phần, hoặc toàn bộ, các hạt của bột có cỡ hạt bằng hoặc lớn hơn 1 micromet. Các hạt cỡ micromet có thể có cỡ hạt chính xác là, ít nhất là, tối đa là, hoặc nhỏ hơn, ví dụ, 1, 2, 5, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90, hoặc 100 micromet ( $\mu\text{m}$ ), hoặc cỡ hạt nằm trong khoảng

được giới hạn bởi hai giá trị bất kỳ trong số các giá trị nêu trên. Theo một vài phương án, các tinh thể hoặc hạt đơn lẻ của chất xúc tác tương ứng với cỡ bất kỳ trong số các cỡ nêu trên, trong khi đó theo các phương án khác, các tinh thể hoặc hạt của chất xúc tác được kết tụ để tạo ra các vi tinh thể hoặc hạt kết tụ có kích thước bất kỳ trong số các kích thước được lấy làm ví dụ trên đây.

Theo các phương án khác, chất xúc tác zeolit có thể ở dạng màng, lớp bao hoặc vô số màng hoặc lớp bao. Độ dày của các lớp bao hoặc vô số lớp bao có thể là, ví dụ, 1, 2, 5, 10, 50, hoặc 100 micromet, hoặc khoảng trong đó, hoặc có độ dày tối đa là 100 micromet. Theo các phương án khác, chất xúc tác zeolit ở dạng chất rắn khối không phải hạt (tức là, dày đặc). Theo các phương án khác nữa, chất xúc tác zeolit có thể có dạng sợi hoặc ở dạng mạng lưới.

Chất xúc tác này cũng có thể được trộn với hoặc được thêm vào nguyên liệu nền thích hợp để vận hành trong thiết bị chuyển hóa có xúc tác. Nguyên liệu nền có thể là bột (ví dụ, có cỡ hạt bất kỳ trong số các cỡ hạt trên đây), hạt (ví dụ, cỡ hạt bằng 0,5mm hoặc lớn hơn), nguyên liệu khối, như đá nguyên khối dạng tổ ong kiểu dòng chảy qua, cấu trúc tấm hoặc nhiều tấm, hoặc lá kim loại nhẵn. Nếu cấu trúc tổ ong được sử dụng, thì cấu trúc tổ ong này có thể có mật độ lỗ tổ ong thích hợp bất kỳ. Ví dụ, cấu trúc lỗ tổ ong có thể có 100, 200, 300, 400, 500, 600, 700, 800, hoặc 900 lỗ tổ ong mỗi in vuông (lỗ tổ ong/in<sup>2</sup>) (hoặc từ 62 đến 140 lỗ tổ ong/cm<sup>2</sup>) hoặc lớn hơn. Nguyên liệu nền thường có cấu trúc hỗn hợp chịu lửa, như các nguyên liệu nền chứa cordierit, mulit, nhôm oxit (ví dụ,  $\alpha$ -,  $\beta$ -, hoặc  $\gamma$ -nhôm oxit), hoặc zircon, hoặc hỗn hợp của chúng. Các cấu trúc lỗ tổ ong, cụ thể là, được mô tả chi tiết trong các patent Mỹ số 5,314,665, 7,442,425, và 7,438,868, các tài liệu này được đưa vào đây bằng cách viện dẫn. Nếu loại được làm nhẵn hoặc loại khác của tấm kim loại được sử dụng, thì các loại này có thể được sắp lớp lên trên nhau với nguyên liệu chất xúc tác được mang trên các tấm này sao cho cho phép dòng chất lỏng chứa rượu đi qua được. Các tấm được sắp lớp cũng có thể được tạo thành cấu trúc, như hình trụ, bằng cách cuộn các tấm.

Theo các phương án cụ thể, chất xúc tác zeolit là hoặc bao gồm cấu trúc loại pentasil mang kim loại bất kỳ trong số các kim loại nêu trên. Theo các phương án cụ thể hơn, chất xúc tác zeolit là, hoặc bao gồm, ví dụ, ZSM5 mang đồng (tức là,

Cu-ZSM5), Fe-ZSM5, Cu,Fe-ZSM5, hoặc hỗn hợp của Cu-ZSM5 và Fe-ZSM5. Theo các phương án khác, chất xúc tác zeolit là hoặc bao gồm, ví dụ, Cu-La-ZSM5, Fe-La-ZSM5, Fe-Cu-La-ZSM5, Cu-Sc-ZSM5, hoặc Cu-In-ZSM5.

Các ví dụ nêu dưới đây nhằm mục đích minh họa và để mô tả các phương án cụ thể nhất định của sáng chế. Tuy nhiên, phạm vi của sáng chế không bị giới hạn theo cách bất kỳ bởi các ví dụ nêu ở đây.

### Ví dụ thực hiện sáng chế

Bình phản ứng xúc tác được nạp 0,2g bột V-ZSM-5 và được gia nhiệt đến nhiệt độ 500°C trong bốn giờ dưới dòng heli khô. Chất xúc tác này được làm nguội đến nhiệt độ 200°C, và metanol, etanol, 1-propanol, 2-propanol, 1-butanol, 2-butanol, *n*-pentanol, 1-hexanol, 1-heptanol, hoặc 1-octanol tinh khiết được đưa vào bình phản ứng sử dụng bơm tiêm ở tốc độ 1,0mL/giờ. Metanol và etanol được đưa vào chỉ nhằm mục đích so sánh. Sự tạo thành sản phẩm sau khi bổ sung chất xúc tác được phân tích bằng sắc ký khí trực tiếp, và số liệu được thể hiện trong các bảng 1-11 dưới đây. Cụ thể là, các kết quả này đã chỉ ra rằng nhiệt độ phản ứng bằng 350°C là thích hợp để làm giảm lượng CO đến mức không đáng kể, mà chứng tỏ mức phân hủy sản phẩm tối thiểu trên bề mặt chất xúc tác.

Mức phân bố hydrocacbon ở các nguyên liệu hydrocacbon được sản xuất từ nhiều rượu khác nhau (tức là, metanol, etanol, 1-propanol, 2-propanol, 1-butanol, 2-butanol, *n*-pentanol, 1-hexanol, 1-heptanol, và 1-octanol) được đề xuất trong bảng 1 dưới đây:

Bảng 1. Mức phân bố hydrocacbon trong các nguyên liệu được sản xuất từ các rượu khác nhau có số nguyên tử cacbon khác nhau

| C | Metanol | Etanol | 1-Propanol | 2-Propanol | 1-Butanol | 2-Butanol | <i>n</i> -Pentanol | 1-Hexanol | 1-Heptanol | 1-Octanol |
|---|---------|--------|------------|------------|-----------|-----------|--------------------|-----------|------------|-----------|
| 2 | 1,17    | 4,15   | 0,22       | 0,22       | 0,25      | 0,17      | 0,20               | 0,28      | 0,17       | 0,17      |
| 3 | 4,30    | 9,76   | 3,85       | 7,14       | 4,79      | 6,99      | 3,97               | 4,70      | 5,29       | 3,63      |
| 4 | 6,78    | 23,96  | 10,80      | 16,38      | 13,83     | 17,07     | 12,07              | 12,64     | 15,36      | 12,77     |
| 5 | 5,59    | 12,14  | 7,51       | 11,73      | 9,52      | 15,30     | 10,22              | 7,52      | 11,03      | 11,77     |
| 6 | 5,46    | 6,83   | 5,03       | 6,79       | 6,04      | 9,32      | 6,22               | 5,72      | 7,00       | 7,53      |
| 7 | 5,42    | 11,90  | 9,85       | 11,22      | 11,66     | 11,26     | 10,78              | 12,64     | 12,74      | 10,24     |
| 8 | 20,56   | 16,82  | 22,82      | 19,05      | 23,96     | 17,19     | 22,42              | 25,86     | 16,92      | 20,91     |

|    |       |       |       |       |       |       |       |       |       |       |
|----|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 9  | 26,55 | 13,03 | 21,94 | 15,39 | 19,38 | 14,83 | 20,35 | 19,79 | 15,35 | 16,26 |
| 10 | 20,26 | 1,42  | 9,13  | 6,77  | 7,33  | 7,50  | 9,00  | 7,35  | 8,79  | 8,21  |
| 11 | 2,65  | 0,00  | 8,84  | 5,31  | 3,24  | 0,00  | 4,77  | 3,50  | 4,12  | 0,47  |
| 12 | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 3,22  | 0,00  |
| 13 | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 0,00  | 8,04  |

Các mức phân bố thành phần chi tiết của các nguyên liệu hydrocacbon được sản xuất bằng nhiều rượu khác nhau được thể hiện trong các bảng 2-11 dưới đây:

Bảng 2. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác etanol

1ml/giờ EtOH LHSV 2,93h<sup>-1</sup>

V-ZSM5 mới

| Đỉnh # | Thời gian duy trì | Diện tích | ID                          | %     |    |       |
|--------|-------------------|-----------|-----------------------------|-------|----|-------|
| 1      | 2,261             | 99929362  | etylen                      | 3,93  | C2 | 4,15  |
| 2      | 2,724             | 5496728   | etan                        | 0,22  | C2 |       |
| 3      | 6,336             | 129830986 | propen                      | 5,11  | C3 | 9,76  |
| 4      | 6,631             | 118239284 | propan                      | 4,65  | C3 |       |
| 5      | 9,443             | 324290840 | isobutan                    | 12,76 | C4 | 23,96 |
| 6      | 9,719             | 130200176 | 2-metyl-1-propen            | 5,12  | C4 |       |
| 7      | 10,034            | 51345640  | butan                       | 2,02  | C4 |       |
| 8      | 10,064            | 69690241  | 2-buten                     | 2,74  | C4 |       |
| 9      | 10,208            | 33499932  | 2-buten                     | 1,32  | C4 |       |
| 10     | 12,272            | 151141384 | 2-metylbutan                | 5,95  | C5 | 12,14 |
| 11     | 12,406            | 35241866  | 2-metyl-2-buten             | 1,39  | C5 |       |
| 12     | 12,568            | 15580023  | cis-1,2-dimetylxyclopropan  | 0,61  | C5 |       |
| 13     | 12,665            | 100134896 | cis-1,2-dimetylXyclopropan  | 3,94  | C5 |       |
| 14     | 12,988            | 6467475   | 4-etenyl-1,2-dimetyl-benzen | 0,25  | C5 |       |
| 15     | 14,439            | 50978121  | 2-metylpentan               | 2,01  | C6 | 6,83  |
| 16     | 14,586            | 18528086  | 3-metylpentan               | 0,73  | C6 |       |
| 17     | 14,628            | 15589528  | 3-metyl-3-penten            | 0,61  | C6 |       |
| 18     | 14,804            | 61570970  | metylxyclopentan            | 2,42  | C6 |       |
| 19     | 15,166            | 27006303  | benzen                      | 1,06  | C6 |       |
| 20     | 16,252            | 20980696  | 1,5-Dimetylxyclopenten      | 0,83  | C7 | 11,90 |
| 21     | 16,346            | 24694733  | 1,2-Dimetylxyclopentan      | 0,97  | C7 |       |

|    |              |               |                             |       |     |       |
|----|--------------|---------------|-----------------------------|-------|-----|-------|
| 22 | 16,424       | 19857803      | 4-etenyl-1,2-dimetyl-Benzen | 0,78  | C10 | 1,42  |
| 23 | 16,664       | 18202042      | 4,4-Dimetylxcyclopenten     | 0,72  | C7  |       |
| 24 | 16,923       | 16348889      | 1-Phenyl-1-buten            | 0,64  | C10 |       |
| 25 | 17,258       | 238620734     | toluen                      | 9,39  | C7  |       |
| 26 | 19,613       | 72628015      | etylbenzen                  | 2,86  | C8  | 16,82 |
| 27 | 19,746       | 285387414     | 1,3-dimetylbenzen           | 11,23 | C8  |       |
| 28 | 20,292       | 69507805      | p-Xylen                     | 2,73  | C8  |       |
| 29 | 23,165       | 166197903     | 1-etyl-4-metylbenzen        | 6,54  | C9  | 13,03 |
| 30 | 23,389       | 114374885     | 1-etyl-2-metylbenzen        | 4,50  | C9  |       |
| 31 | 24,430       | 50728460      | 1,2,4-trimetylbenzen        | 2,00  | C9  |       |
|    | Tổng cộng    | 2542291220    |                             |       |     |       |
|    | % nhiên liệu | 95,85         |                             |       |     |       |
|    | C2+          | Hợp chất thơm |                             | 41,72 |     |       |
|    |              | Olefin        |                             | 18,80 |     |       |
|    |              | Parafin       |                             | 9,09  |     |       |
|    |              | i-Parafin     |                             | 25,99 |     |       |
|    |              | Naphtalen     |                             | 0,00  |     |       |

Bảng 3. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác isobutanol

Isobutanol 1,0ml/giờ

V-ZSM5 mới

| Đỉnh # | Thời gian duy trì | Diện tích | ID               | %    |          |
|--------|-------------------|-----------|------------------|------|----------|
| 1      | 1,314             | 2540508   | N2               |      |          |
| 2      | 2,274             | 4692123   | etylen           | 0,17 | C2 0,17  |
| 3      | 5,830             | 559297124 | H2O              |      |          |
| 4      | 6,314             | 158907450 | propen           | 5,86 | C3 6,99  |
| 5      | 6,610             | 30761820  | propan           | 1,13 | C3       |
| 6      | 9,466             | 110114626 | isobutan         | 4,06 | C4 17,07 |
| 7      | 9,722             | 201912349 | 2-metyl-1-propen | 7,44 | C4       |
| 8      | 10,076            | 101653877 | (E)-2-Buten      | 3,75 | C4       |
| 9      | 10,221            | 49567571  | (E)-2-Buten      | 1,83 | C4       |
| 10     | 11,950            | 6853410   | 2-Metyl-1-buten  | 0,25 | C5 15,30 |



## 21943

|    |        |           |                           |       |          |
|----|--------|-----------|---------------------------|-------|----------|
| 11 | 12,150 | 9534788   | Axeton                    | 0,35  |          |
| 12 | 12,288 | 74860884  | 2-metylbutan              | 2,76  | C5       |
| 13 | 12,416 | 73929701  | 2-metyl-2-buten           | 2,72  | C5       |
| 14 | 12,577 | 39343224  | (E)-2-Penten              | 1,45  | C5       |
| 15 | 12,670 | 220216552 | 2-metyl-2-buten           | 8,12  | C5       |
| 16 | 14,257 | 20687916  | (Z)-4-Metyl-2-penten      | 0,76  | C6 9,32  |
| 17 | 14,458 | 43497772  | 2-methylpentan            | 1,60  | C6       |
| 18 | 14,559 | 15385936  | 2-Metyl-1-penten          | 0,57  | C6       |
| 19 | 14,647 | 53768192  | (E)-3-Metyl-2-penten      | 1,98  | C6       |
| 20 | 14,725 | 27793873  | 3-metylen-Pentan          | 1,02  | C6       |
| 21 | 14,810 | 43169806  | (E)-3-Metyl-2-penten      | 1,59  | C6       |
| 22 | 14,863 | 48611348  | 2,4-Hexadien              | 1,79  | C6       |
| 23 | 15,894 | 5922368   | (E)-4,4-Dimetyl-2-penten  | 0,22  | C7 11,26 |
| 24 | 16,163 | 6187063   | (Z)-3-Metyl-2-hexen       | 0,23  | C7       |
| 25 | 16,259 | 37724570  | 4,4-Dimetylxyclopenten    | 1,39  | C7       |
| 26 | 16,367 | 29705705  | 2-Metylhexan              | 1,09  | C7       |
| 27 | 16,442 | 37388672  | 3-Metylhexan              | 1,38  | C7       |
| 28 | 16,514 | 27646209  | 3-Metyl-3-hexen           | 1,02  | C7       |
| 29 | 16,684 | 53044824  | 4,4-Dimetylxyclopenten    | 1,96  | C7       |
| 30 | 16,944 | 15704856  | Xycloheptan               | 0,58  | C7       |
| 31 | 17,205 | 15042326  | 1-Metylxyclohexen         | 0,55  | C7       |
| 32 | 17,282 | 77197844  | Toluen                    | 2,85  | C7       |
| 33 | 18,028 | 22675409  | 2,5-Dimetyl-2,4-Hexadien  | 0,84  | C8 17,19 |
| 34 | 18,262 | 29368151  | 1,2,3-Trimetylxyclopenten | 1,08  | C8       |
| 35 | 18,393 | 16737579  | 2,5-dimetyl-Hexan         | 0,62  | C8       |
| 36 | 18,469 | 16634463  |                           | 0,61  |          |
| 37 | 18,626 | 19975485  | 1,2-Dimetylxyclohexen     | 0,74  | C8       |
| 38 | 19,058 | 21540845  | 1,4-Dimetyl-1-xyclohexen  | 0,79  | C8       |
| 39 | 19,642 | 41030284  | Etylbenzen                | 1,51  | C8       |
| 40 | 19,783 | 274188758 | o-Xylen                   | 10,11 | C8       |
| 41 | 20,326 | 24311822  | p-Xylen                   | 0,90  | C8       |
| 42 | 23,165 | 145434254 | 1-Etyl-3-metylbenzen      | 5,36  | C9 14,83 |

|    |              |               |                          |       |          |
|----|--------------|---------------|--------------------------|-------|----------|
| 43 | 23,381       | 180443866     | 1-Etyl-4-metylbenzen     | 6,65  | C9       |
| 44 | 24,408       | 76435352      | 1,3,5-Trimetylbenzen     | 2,82  | C9       |
| 45 | 28,620       | 36889320      | 1,2-Dietylbenzen         | 1,36  | C10 7,50 |
| 46 | 28,999       | 45891003      | 1-Metyl-4-propylbenzen   | 1,69  | C10      |
| 47 | 29,439       | 83204150      | 1,3-Dietylbenzen         | 3,07  | C10      |
| 48 | 30,794       | 37586404      | 1-etyl-2,3-dimetylBenzen | 1,39  | C10      |
|    | Tổng cộng    | 2713174800    |                          |       |          |
|    | % nhiên liệu | 99,48         |                          |       |          |
|    |              |               |                          |       |          |
|    | C2+          | Hợp chất thơm |                          | 37,69 |          |
|    |              | Olefin        |                          | 46,92 |          |
|    |              | Parafin       |                          | 1,71  |          |
|    |              | i-Parafin     |                          | 12,54 |          |
|    |              | Naphtalen     |                          | 0,00  |          |

Bảng 4. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác isopropanol

V-ZSM5 Isopropanol

1,0ml/giờ

V-ZSM5 mới

| Đỉnh # | Thời gian duy trì | Diện tích | ID                         | %    |    |       |
|--------|-------------------|-----------|----------------------------|------|----|-------|
| 1      | 1,315             | 1865227   | N2                         |      |    |       |
| 2      | 2,277             | 11295030  | etylen                     | 0,22 | C2 | 0,22  |
| 3      | 6,353             | 284807891 | Propen                     | 5,44 | C3 | 7,14  |
| 4      | 6,660             | 88859654  | Propan                     | 1,70 | C3 |       |
| 5      | 9,468             | 277841074 | Isobutan                   | 5,31 | C4 | 16,38 |
| 6      | 9,733             | 292402610 | 2-Metyl-1-propen           | 5,58 | C4 |       |
| 7      | 10,081            | 200805895 | (E)-2-Buten                | 3,84 | C4 |       |
| 8      | 10,225            | 86404741  | (E)-2-Buten                | 1,65 | C4 |       |
| 9      | 11,954            | 9006210   | 2-Metyl-1-buten            | 0,17 | C5 | 11,73 |
| 10     | 12,293            | 168781936 | 2-Metylbutan               | 3,22 | C5 |       |
| 11     | 12,423            | 98284664  | 2-metyl-2-buten            | 1,88 | C5 |       |
| 12     | 12,585            | 50297074  | cis-1,2-dimetylXyclopropan | 0,96 | C5 |       |

|    |        |           |                           |       |          |
|----|--------|-----------|---------------------------|-------|----------|
| 13 | 12,681 | 287791280 | 2-metyl-2-buten           | 5,50  | C5       |
| 14 | 14,260 | 22420197  | (Z)-4-Metyl-2-penten      | 0,43  | C6 6,79  |
| 15 | 14,463 | 73311992  | 2-Metylpentan             | 1,40  | C6       |
| 16 | 14,652 | 86982993  | (E)-3-Metyl-2-penten      | 1,66  | C6       |
| 17 | 14,728 | 29361909  | (Z)-3-Metyl-2-penten      | 0,56  | C6       |
| 18 | 14,865 | 123566685 | 3,3-Dimetyl-1-xyclobuten  | 2,36  | C6       |
| 19 | 15,184 | 19963266  | Benzen                    | 0,38  | C6       |
| 20 | 16,170 | 9075369   | 3-Metyl-2-hexen           | 0,17  | C7 11,22 |
| 21 | 16,265 | 42062489  | 3,5-Dimetylxyclopenten    | 0,80  | C7       |
| 22 | 16,372 | 50656790  | 2-Metylhexan              | 0,97  | C7       |
| 23 | 16,449 | 77531237  | 3-Metylhexan              | 1,48  | C7       |
| 24 | 16,689 | 61007417  | 4,4-Dimetylxyclopenten    | 1,17  | C7       |
| 25 | 16,950 | 25335024  | Xycloheptan               | 0,48  | C7       |
| 26 | 17,280 | 321846799 | Toluen                    | 6,15  | C7       |
| 27 | 18,036 | 23840370  | 2,5-Dimetyl-2,4-Hexadien  | 0,46  | C8 19,05 |
| 28 | 18,268 | 30208676  | 1,2,3-Trimetylxyclopenten | 0,58  | C8       |
| 29 | 18,398 | 17715303  | 3,4-Dimetylstyren         | 0,34  | C10      |
| 30 | 18,477 | 16278464  | 1-Phenyl-1-buten          | 0,31  | C10      |
| 31 | 18,632 | 29349655  | 1,2-Dimetyl-1-xycloocten  | 0,56  | C8       |
| 32 | 19,063 | 23491603  | 1,4-Dimetyl-1-xyclohexen  | 0,45  | C8       |
| 33 | 19,647 | 108922698 | Etylbenzen                | 2,08  | C8       |
| 34 | 19,777 | 659965124 | 1,3-Dimetylbenzen         | 12,60 | C8       |
| 35 | 20,330 | 121683074 | o-Xylen                   | 2,32  | C8       |
| 36 | 23,177 | 344326573 | 1-Etyl-4-metylbenzen      | 6,58  | C9 15,39 |
| 37 | 23,401 | 270335380 | 1-Etyl-4-metylbenzen      | 5,16  | C9       |
| 38 | 23,887 | 29461270  | 1-Etyl-3-metylbenzen      | 0,56  | C9       |
| 39 | 24,426 | 161922912 | 1,3,5-Trimetylbenzen      | 3,09  | C9       |
| 40 | 28,645 | 58050896  | 1,4-Dietylbenzen          | 1,11  | C10 6,77 |
| 41 | 29,031 | 59415638  | 1-Metyl-4-propylbenzen    | 1,13  | C10      |
| 42 | 29,474 | 87523049  | 1,3-Dietylbenzen          | 1,67  | C10      |
| 43 | 30,780 | 61042481  | 4-Etyl-1,2-dimetylbenzen  | 1,17  | C10      |
| 44 | 33,670 | 54483429  | 2,5-Dimetylstyren         | 1,04  | C10      |

|    |              |            |                      |      |          |
|----|--------------|------------|----------------------|------|----------|
| 45 | 41,962       | 237019659  | 1,2-DiMetylindan     | 4,53 | C11 5,31 |
| 46 | 62,493       | 28816675   | Benzoxycloheptatrien | 0,55 | C11      |
| 47 | 62,590       | 12334525   | Benzoxycloheptatrien | 0,24 | C11      |
|    | tổng cộng    | 5235887680 |                      |      |          |
|    | % nhiên liệu | 99,78      |                      |      |          |

|     |               |       |
|-----|---------------|-------|
| C2+ | Hợp chất thơm | 51,02 |
|     | Olefin        | 33,56 |
|     | Parafin       | 2,18  |
|     | i-Parafin     | 13,34 |
|     | Naphtalen     | 0,00  |

Bảng 5. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác 1-propanol

V-ZSM5 1-propanol

1,0ml/giờ

V-ZSM5 mới

| Đỉnh # | Thời gian duy trì | Diện tích | ID                         | %    |          |
|--------|-------------------|-----------|----------------------------|------|----------|
| 1      | 1,315             | 3125142   | N2                         |      |          |
| 2      | 2,275             | 17304136  | etylen                     | 0,22 | C2 0,22  |
| 3      | 6,356             | 181085311 | Propen                     | 2,32 | C3 3,85  |
| 4      | 6,653             | 118998289 | Propan                     | 1,53 | C3       |
| 5      | 9,462             | 397009252 | Isobutan                   | 5,09 | C4 10,80 |
| 6      | 9,736             | 201615562 | 2-Metyl-1-propen           | 2,59 | C4       |
| 7      | 10,080            | 190488824 | (E)-2-Buten                | 2,44 | C4       |
| 8      | 10,226            | 52586609  | (E)-2-Buten                | 0,67 | C4       |
| 9      | 12,288            | 263620042 | 2-Metylbutan               | 3,38 | C5 7,51  |
| 10     | 12,423            | 67251414  | 2-Metyl-2-buten            | 0,86 | C5       |
| 11     | 12,586            | 29983786  | cis-1,2-Dimetylcyclopropan | 0,38 | C5       |
| 12     | 12,680            | 224548579 | 2-Metyl-2-buten            | 2,88 | C5       |
| 13     | 14,260            | 11832906  | (Z)-4-Metyl-2-penten       | 0,15 | C6 5,03  |
| 14     | 14,460            | 129281220 | 2-Metylpentan              | 1,66 | C6       |
| 15     | 14,647            | 79083850  | (E)-3-Metyl-2-penten       | 1,01 | C6       |

|    |              |            |                                  |       |          |
|----|--------------|------------|----------------------------------|-------|----------|
| 16 | 14,729       | 15611036   | (Z)-3-Metyl-2-penten             | 0,20  | C6       |
| 17 | 14,827       | 131740181  | Metylxcyclopentan                | 1,69  | C6       |
| 18 | 15,183       | 24170874   | Benzen                           | 0,31  | C6       |
| 19 | 15,384       | 10235741   | 3,4-Dimetylstyren                | 0,13  | C10      |
| 20 | 16,266       | 46325622   | 4,4-Dimetylxcyclopenten          | 0,59  | C7 9,85  |
| 21 | 16,370       | 84616179   | 2-Metylhexan                     | 1,09  | C7       |
| 22 | 16,446       | 80475937   | 3-Metylhexan                     | 1,03  | C7       |
| 23 | 16,690       | 70526800   | 4,4-Dimetylxcyclopenten          | 0,90  | C7       |
| 24 | 16,947       | 37769140   | Xycloheptan                      | 0,48  | C7       |
| 25 | 17,276       | 447929711  | Toluen                           | 5,75  | C7       |
| 26 | 18,034       | 24166273   | 1,2,3-Trimetylxcyclopenten       | 0,31  | C8 22,82 |
| 27 | 18,264       | 41133379   | 1,2,3-Trimetylxcyclopenten       | 0,53  | C8       |
| 28 | 18,399       | 30074870   | 2-Metylheptan                    | 0,39  | C8       |
| 29 | 18,485       | 22800835   | 3-Etylhexan                      | 0,29  | C8       |
| 30 | 18,624       | 41008512   | trans-1-Etyl-3-Metylxcyclopentan | 0,53  | C8       |
| 31 | 19,059       | 26103216   | 1,4-Dimetyl-1-xyclohexen         | 0,33  | C8       |
| 32 | 19,633       | 187506172  | Etylbenzen                       | 2,41  | C8       |
| 33 | 19,759       | 1235460116 | 1,3-Dimetylbenzen                | 15,85 | C8       |
| 34 | 20,320       | 170703061  | 1,3-Dimetylbenzen                | 2,19  | C8       |
| 35 | 23,135       | 794895255  | 1-Etyl-4-metylbenzen             | 10,20 | C9 21,94 |
| 36 | 23,363       | 570580090  | 1-Etyl-4-metylbenzen             | 7,32  | C9       |
| 37 | 23,865       | 28212701   | 1-Etyl-3-metylbenzen             | 0,36  | C9       |
| 38 | 24,393       | 316613928  | 1,3,5-Trimetylbenzen             | 4,06  | C9       |
| 39 | 28,559       | 161629987  | 1,3-Dietylbenzen                 | 2,07  | C10 9,13 |
| 40 | 28,942       | 152696773  | 1-Metyl-4-propylbenzen           | 1,96  | C10      |
| 41 | 29,391       | 171879965  | 1,3-Dietylbenzen                 | 2,21  | C10      |
| 42 | 30,729       | 117917063  | 1-Etyl-2,3-dimetylbenzen         | 1,51  | C10      |
| 43 | 33,574       | 97589295   | 5-Metylinđan                     | 1,25  | C10      |
| 44 | 41,858       | 689178379  | 1,2-DiMetylinđan                 | 8,84  | C11 8,84 |
|    | Tổng cộng    | 7794240871 |                                  |       |          |
|    | % nhiên liệu | 99,78      |                                  |       |          |

|     |               |       |
|-----|---------------|-------|
| C2+ | Hợp chất thơm | 66,42 |
|     | Olefin        | 15,81 |
|     | Parafin       | 3,70  |
|     | i-Parafin     | 13,46 |
|     | Naphtalen     | 0,00  |

Bảng 6. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác 1-butanol

V-ZSM5 1-butanol 1,0ml/giờ V-ZSM5 mới

| Thời gian duy |        |           |                            |      |    |       |
|---------------|--------|-----------|----------------------------|------|----|-------|
| #             | trị    | Diện tích | ID                         | %    |    |       |
| 1             | 1,315  | 3014692   | N2                         |      |    |       |
| 2             | 2,277  | 16660014  | etylen                     | 0,25 | C2 | 0,25  |
| 3             | 6,359  | 203413515 | Propen                     | 3,03 | C3 | 4,79  |
| 4             | 6,659  | 118271351 | Propan                     | 1,76 | C3 |       |
| 5             | 9,465  | 410087310 | Isobutan                   | 6,11 | C4 | 13,83 |
| 6             | 9,738  | 233331010 | 2-Metyl-1-propen           | 3,47 | C4 |       |
| 7             | 10,083 | 222688373 | (E)-2-Buten                | 3,32 | C4 |       |
| 8             | 10,230 | 62852301  | (E)-2-Buten                | 0,94 | C4 |       |
| 9             | 12,293 | 265224151 | 2-Metylbutan               | 3,95 | C5 | 9,52  |
| 10            | 12,427 | 81651223  | 2-Metyl-2-buten            | 1,22 | C5 |       |
| 11            | 12,588 | 37637085  | cis-1,2-Dimetylxyclopropan | 0,56 | C5 |       |
| 12            | 12,684 | 254941080 | 2-Metyl-2-buten            | 3,80 | C5 |       |
| 13            | 14,262 | 13919602  | (Z)-4-Metyl-2-penten       | 0,21 | C6 | 6,04  |
| 14            | 14,463 | 117523057 | 2-Metylpentan              | 1,75 | C6 |       |
| 15            | 14,652 | 84672350  | 3,3-Dimetyl-1-buten        | 1,26 | C6 |       |
| 16            | 14,730 | 19474080  | 3-Metylenpentan            | 0,29 | C6 |       |
| 17            | 14,829 | 139052587 | Metylxyclopentan           | 2,07 | C6 |       |
| 18            | 15,186 | 30985719  | Benzen                     | 0,46 | C6 |       |
| 19            | 16,270 | 50795406  | 3,5-Dimetylxyclopenten     | 0,76 | C7 | 11,66 |
| 20            | 16,373 | 72164678  | 2-Metylhexan               | 1,07 | C7 |       |

|              |        |            |                                      |       |     |       |
|--------------|--------|------------|--------------------------------------|-------|-----|-------|
| 21           | 16,448 | 74467645   | 3-Metylhexan                         | 1,11  | C7  |       |
| 22           | 16,692 | 67535376   | 4,4-Dimetylxcyclopenten              | 1,01  | C7  |       |
| 23           | 16,949 | 35396832   | Xycloheptan                          | 0,53  | C7  |       |
| 24           | 17,276 | 482909837  | Toluen                               | 7,19  | C7  |       |
| 25           | 18,035 | 22627099   | 1,2,3-Trimetylxcyclopenten           | 0,34  | C8  | 23,96 |
| 26           | 18,266 | 36159987   | 1,2,3-Trimetylxcyclopenten           | 0,54  | C8  |       |
| 27           | 18,402 | 27410841   | 2-Metylheptan                        | 0,41  | C8  |       |
| 28           | 18,488 | 22705195   | 3-Etylhexan                          | 0,34  | C8  |       |
| 29           | 18,627 | 38254495   | trans-1-Etyl-3-Metylxcyclopentan     | 0,57  | C8  |       |
| 30           | 19,060 | 26497992   | 1,4-Dimetyl-1-xyclohexen             | 0,39  | C8  |       |
| 31           | 19,636 | 173965093  | Etylbenzen                           | 2,59  | C8  |       |
| 32           | 19,760 | 1070615946 | o-Xylen                              | 15,94 | C8  |       |
| 33           | 20,321 | 190894931  | o-Xylen                              | 2,84  | C8  |       |
| 34           | 23,153 | 590271414  | 1-Etyl-4-metylbenzen                 | 8,79  | C9  | 19,38 |
| 35           | 23,375 | 416841528  | 1-Etyl-4-metylbenzen                 | 6,21  | C9  |       |
| 36           | 23,869 | 37194152   | 1-Etyl-3-metylbenzen                 | 0,55  | C9  |       |
| 37           | 24,410 | 257042228  | 1,3,5-Trimetylbenzen                 | 3,83  | C9  |       |
| 38           | 28,588 | 108824592  | 1,3-Dietylbenzen                     | 1,62  | C10 | 7,33  |
| 39           | 28,982 | 87285693   | 1-Metyl-4-propylbenzen               | 1,30  | C10 |       |
| 40           | 29,410 | 120104862  | 1,3-Dietylbenzen                     | 1,79  | C10 |       |
| 41           | 30,738 | 90506279   | 1-Etyl-2,3-dimetylbenzen             | 1,35  | C10 |       |
| 42           | 33,584 | 85301513   | 5-Metylindan                         | 1,27  | C10 |       |
| 43           | 41,883 | 115518224  | 1-Metyl-4-(1-metyl-2-propenyl)benzen | 1,72  | C11 | 3,24  |
| 44           | 62,789 | 101802208  | Benzoxycloheptatrien                 | 1,52  | C11 |       |
| Tổng cộng    |        |            |                                      |       |     |       |
| TỔNG cộng    |        |            |                                      |       |     |       |
| 6715478854   |        |            |                                      |       |     |       |
| % nhiên liệu |        |            |                                      |       |     |       |
| 99,75        |        |            |                                      |       |     |       |
| Hợp chất     |        |            |                                      |       |     |       |
| C2+ thom     |        |            |                                      |       |     |       |
| 58,97        |        |            |                                      |       |     |       |
| Olefin       |        |            |                                      |       |     |       |
| 20,27        |        |            |                                      |       |     |       |

|           |       |
|-----------|-------|
| Parafin   | 4,36  |
| i-Parafin | 15,03 |
| Naphtalen | 0,00  |

Bảng 7. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác metanol

V-ZSM5 Metanol 1,0ml/giờ

V-ZSM5 mới

| Đỉnh # | Thời gian duy trì | Diện tích | ID                         | %            |
|--------|-------------------|-----------|----------------------------|--------------|
| 1      | 1,315             | 3773719   | N2                         |              |
| 2      | 2,274             | 56376777  | etylen                     | 1,17 C2 1,17 |
| 3      | 6,365             | 129419213 | Propen                     | 2,68 C3 4,30 |
| 4      | 6,661             | 78090343  | Propan                     | 1,62 C3      |
| 5      | 7,968             | 55299128  | Dimetyl ete                | 1,14         |
| 6      | 9,018             | 38383487  | Metanol                    |              |
| 7      | 9,473             | 169251064 | Isobutan                   | 3,50 C4 6,78 |
| 8      | 9,744             | 62040641  | 2-Metyl-1-propen           | 1,28 C4      |
| 9      | 10,085            | 73654585  | (E)-2-Buten                | 1,52 C4      |
| 10     | 10,230            | 22359490  | (E)-2-Buten                | 0,46 C4      |
| 11     | 12,162            | 5832992   | Axeton                     | 0,12         |
| 12     | 12,294            | 174708784 | 2-Metylbutan               | 3,62 C5 5,59 |
| 13     | 12,426            | 24981409  | 2-Metyl-2-buten            | 0,52 C5      |
| 14     | 12,590            | 9377331   | cis-1,2-Dimetylxyclopropan | 0,19 C5      |
| 15     | 12,687            | 60899333  | cis-1,2-Dimetylxyclopropan | 1,26 C5      |
| 16     | 14,258            | 5117728   | (Z)-4-Metyl-2-penten       | 0,11 C6 5,46 |
| 17     | 14,459            | 116754679 | 2-Metylpentan              | 2,42 C6      |
| 18     | 14,608            | 83377958  | 3-Metylpentan              | 1,73 C6      |
| 19     | 14,826            | 52254077  | Metylxyclopentan           | 1,08 C6      |
| 20     | 15,184            | 6141636   | Benzen                     | 0,13 C6      |
| 21     | 16,276            | 18294215  | 1,5-Dimetylxyclopenten     | 0,38 C7 5,42 |
| 22     | 16,371            | 42872148  | 2-Metylhexan               | 0,89 C7      |
| 23     | 16,450            | 45667998  | 3-Metylhexan               | 0,95 C7      |
| 24     | 16,690            | 23459989  | 1,5-Dimetylxyclopenten     | 0,49 C7      |



|    |              |               |                                |       |           |
|----|--------------|---------------|--------------------------------|-------|-----------|
| 25 | 16,949       | 38853967      | Metylxclohexan                 | 0,80  | C7        |
| 26 | 17,285       | 92649484      | Toluen                         | 1,92  | C7        |
| 27 | 18,036       | 10654190      | 1,2,3-Trimetylxclopenten       | 0,22  | C8 20,56  |
| 28 | 18,266       | 19213082      | 1,2,3-Trimetylxclopenten       | 0,40  | C8        |
| 29 | 18,397       | 12058000      | 1-Phenyl-1-buten               | 0,25  | C10       |
| 30 | 18,623       | 31312293      | trans-1-Etyl-3-Metylxclopentan | 0,65  | C8        |
| 31 | 19,645       | 32318371      | Etylbenzen                     | 0,67  | C8        |
| 32 | 19,774       | 778709632     | 1,3-dimetyl-Benzen             | 16,12 | C8        |
| 33 | 20,325       | 120871778     | o-Xylen                        | 2,50  | C8        |
| 34 | 23,171       | 176785332     | 1-Etyl-4-metylbenzen           | 3,66  | C9 26,55  |
| 35 | 23,389       | 140557181     | 1-Etyl-4-metylbenzen           | 2,91  | C9        |
| 36 | 24,350       | 964999159     | 1,2,3-Trimetylbenzen           | 19,98 | C9        |
| 37 | 28,568       | 22503552      | 1,4-Dietylbenzen               | 0,47  | C10 20,26 |
| 38 | 28,957       | 25651693      | 1-Metyl-4-propylbenzen         | 0,53  | C10       |
| 39 | 29,413       | 26242130      | 1,4-Dietylbenzen               | 0,54  | C10       |
| 40 | 30,677       | 128116004     | 4-Etyl-1,2-dimetylbenzen       | 2,65  | C10       |
| 41 | 32,654       | 764100085     | 1,2,4,5-Tetrametylbenzen       | 15,82 | C10       |
| 42 | 42,185       | 128138675     | 1,2-DiMetylinđan               | 2,65  | C11 2,65  |
|    | tổng cộng    | 4829966126    |                                |       |           |
|    | % nhiên liệu | 97,57         |                                |       |           |
|    | C2+          | Hợp chất thơm |                                | 70,56 |           |
|    |              | Olefin        |                                | 8,31  |           |
|    |              | Parafin       |                                | 3,50  |           |
|    |              | i-Parafin     |                                | 15,20 |           |
|    |              | Naphtalen     |                                |       |           |

Bảng 8. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác n-pentanol

V-ZSM5 n-Pentanol 1,0ml/giờ V-ZSM5 mới

Đỉnh Thời gian

# duy trì Diện tích ID %

|    |        |           |                             |      |     |       |
|----|--------|-----------|-----------------------------|------|-----|-------|
| 1  | 1,315  | 2121043   | N2                          |      |     |       |
| 2  | 2,275  | 12683569  | etylen                      | 0,20 | C2  | 0,20  |
| 3  | 6,354  | 167106441 | Propen                      | 2,66 | C3  | 3,97  |
| 4  | 6,655  | 82106482  | Propan                      | 1,31 | C3  |       |
| 5  | 9,461  | 310805897 | Isobutan                    | 4,95 | C4  | 12,07 |
| 6  | 9,732  | 218539689 | 2-Metyl-1-propen            | 3,48 | C4  |       |
| 7  | 10,080 | 170495753 | (E)-2-Buten                 | 2,72 | C4  |       |
| 8  | 10,226 | 57789880  | (E)-2-Buten                 | 0,92 | C4  |       |
| 9  | 12,287 | 262282550 | 2-Metylbutan                | 4,18 | C5  | 10,22 |
| 10 | 12,423 | 82813632  | 2-Metyl-2-buten             | 1,32 | C5  |       |
| 11 | 12,584 | 38222977  | cis-1,2-Dimetylxyclopropan  | 0,61 | C5  |       |
| 12 | 12,679 | 258385608 | 2-Metyl-2-buten             | 4,12 | C5  |       |
| 13 | 14,260 | 17501131  | (Z)-4-Metyl-2-penten        | 0,28 | C6  | 6,22  |
| 14 | 14,460 | 111914946 | 2-Metylpentan               | 1,78 | C6  |       |
| 15 | 14,650 | 85924326  | (E)-3-Metyl-2-penten        | 1,37 | C6  |       |
| 16 | 14,728 | 22669228  | 3-Metylenpentan             | 0,36 | C6  |       |
| 17 | 14,825 | 133319879 | Xyclohexan                  | 2,12 | C6  |       |
| 18 | 15,184 | 19054502  | Benzen                      | 0,30 | C6  |       |
| 19 | 15,387 | 7494446   | 3,4-Dimetylstyren           | 0,12 | C10 |       |
| 20 | 16,268 | 55324121  | 3,5-Dimetylxyclopenten      | 0,88 | C7  | 10,78 |
| 21 | 16,371 | 64614064  | 2-Metylhexan                | 1,03 | C7  |       |
| 22 | 16,445 | 77278326  | 3-Metylhexan                | 1,23 | C7  |       |
| 23 | 16,690 | 75725654  | 1,5-Dimetylxyclopenten      | 1,21 | C7  |       |
| 24 | 16,866 | 8311714   | Etylidenexyclopentan        | 0,13 | C7  |       |
| 25 | 16,948 | 32056508  | Xycloheptan                 | 0,51 | C7  |       |
| 26 | 17,277 | 363327273 | Toluen                      | 5,79 | C7  |       |
| 27 | 18,034 | 30194111  | 1,2,3-Trimetylxyclopenten   | 0,48 | C8  | 22,42 |
| 28 | 18,265 | 46793135  | 1,2,3-Trimetylxyclopenten   | 0,75 | C8  |       |
| 29 | 18,400 | 26716425  | 2-Metylheptan               | 0,43 | C8  |       |
| 30 | 18,484 | 22361491  | 3-Etylhexan                 | 0,36 | C8  |       |
| 31 | 18,629 | 36905233  | 1-Metyl-2-metylenxyclohexan | 0,59 | C8  |       |
| 32 | 19,061 | 26990281  | 1,4-Dimetyl-1-xyclohexen    | 0,43 | C8  |       |

|    |              |            |                           |       |     |       |
|----|--------------|------------|---------------------------|-------|-----|-------|
| 33 | 19,635       | 142263071  | Etylbenzen                | 2,27  | C8  |       |
| 34 | 19,761       | 928961476  | o-Xylen                   | 14,80 | C8  |       |
| 35 | 20,322       | 146087057  | p-Xylen                   | 2,33  | C8  |       |
| 36 | 23,136       | 540233767  | 1-Etyl-4-metylbenzen      | 8,61  | C9  | 20,35 |
| 37 | 23,359       | 456030936  | 1-Etyl-4-metylbenzen      | 7,26  | C9  |       |
| 38 | 23,862       | 27966846   | 1-Etyl-3-metylbenzen      | 0,45  | C9  |       |
| 39 | 24,388       | 253504187  | 1,3,5-Trimetylbenzen      | 4,04  | C9  |       |
| 40 | 28,526       | 107459033  | 1,3-Dietylbenzen          | 1,71  | C10 | 9,00  |
| 41 | 28,919       | 107071886  | 1-Metyl-4-propylbenzen    | 1,71  | C10 |       |
| 42 | 29,344       | 154258228  | 1,3-Dietylbenzen          | 2,46  | C10 |       |
| 43 | 30,671       | 102653082  | 1-Isopropyl-3-metylbenzen | 1,64  | C10 |       |
| 44 | 33,488       | 85976479   | 4-Metylindan              | 1,37  | C10 |       |
| 45 | 38,047       | 43661203   | 1-Metyl-3,5-dietylbenzen  | 0,70  | C11 | 4,77  |
|    |              |            | 1-Metyl-4-(1-metyl-2-     |       |     |       |
| 46 | 41,610       | 145529444  | propenyl)benzen           | 2,32  | C11 |       |
| 47 | 61,997       | 87616280   | Benzoxycloheptatrien      | 1,40  | C11 |       |
| 48 | 62,251       | 22937545   | Benzoxycloheptatrien      | 0,37  | C11 |       |
|    | Tổng cộng    | 6277919792 |                           |       |     |       |
|    | % nhiên liệu | 99,80      |                           |       |     |       |

## Hợp chất

|     |           |       |
|-----|-----------|-------|
| C2+ | thom      | 59,61 |
|     | Olefin    | 19,40 |
|     | Parafin   | 4,96  |
|     | i-Parafin | 15,51 |
|     | Naphtalen | 0,00  |

Bảng 9. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác 1-hexanol

V-ZSM5 1-hexanol 1,0ml/giờ

V-ZSM5 mới

| Đỉnh # | Thời gian duy trì | Diện tích | ID     | %    |         |
|--------|-------------------|-----------|--------|------|---------|
| 1      | 2,276             | 18220777  | etylen | 0,28 | C2 0,28 |

|    |        |            |                                 |       |          |
|----|--------|------------|---------------------------------|-------|----------|
| 2  | 6,355  | 159997699  | Propen                          | 2,48  | C3 4,70  |
| 3  | 6,650  | 143494331  | Propan                          | 2,22  | C3       |
| 4  | 9,459  | 435220551  | Isobutan                        | 6,75  | C4 12,64 |
| 5  | 9,738  | 153220259  | 2-Metyl-1-propen                | 2,37  | C4       |
| 6  | 10,050 | 96838493   | Butan                           | 1,50  | C4       |
| 7  | 10,083 | 88717943   | (E)-2-Buten                     | 1,38  | C4       |
| 8  | 10,229 | 41186627   | (E)-2-Buten                     | 0,64  | C4       |
| 9  | 12,290 | 248979245  | 2-Metylbutan                    | 3,86  | C5 7,52  |
| 10 | 12,428 | 50423136   | 2-Metyl-2-buten                 | 0,78  | C5       |
| 11 | 12,589 | 21517724   | cis-1,2-Dimetylxyclopropan      | 0,33  | C5       |
| 12 | 12,684 | 163980637  | cis-1,2-Dimetylxyclopropan      | 2,54  | C5       |
| 13 | 14,460 | 130061625  | 2-Metylpentan                   | 2,02  | C6 5,72  |
| 14 | 14,611 | 71435879   | 3-Metylpentan                   | 1,11  | C6       |
| 15 | 14,830 | 112079037  | Metylxyclopentan                | 1,74  | C6       |
| 16 | 15,184 | 55334753   | Benzen                          | 0,86  | C6       |
| 17 | 16,271 | 23831372   | 4,4-Dimetylxyclopenten          | 0,37  | C7 12,64 |
| 18 | 16,371 | 49488024   | 1,3-Dimetylxyclopentan          | 0,77  | C7       |
| 19 | 16,448 | 37291418   | 3-Metylhexan                    | 0,58  | C7       |
| 20 | 16,692 | 27463787   | 4,4-Dimetylxyclopenten          | 0,43  | C7       |
| 21 | 16,948 | 22117165   | Xycloheptan                     | 0,34  | C7       |
| 22 | 17,266 | 655388903  | Toluen                          | 10,16 | C7       |
| 23 | 18,267 | 15743538   | 1,2,3-Trimetylxyclopenten       | 0,24  | C8 25,86 |
| 24 | 18,623 | 17395888   | trans-1-Etyl-3-Metylxyclopentan | 0,27  | C8       |
| 25 | 19,629 | 188171335  | Etylbenzen                      | 2,92  | C8       |
| 26 | 19,739 | 1177194930 | 1,3-Dimetylbenzen               | 18,25 | C8       |
| 27 | 20,315 | 270038608  | p-Xylen                         | 4,19  | C8       |
| 28 | 23,133 | 581034837  | 1-Etyl-4-metylbenzen            | 9,01  | C9 19,79 |
| 29 | 23,369 | 346827203  | 1-Etyl-4-metylbenzen            | 5,38  | C9       |
| 30 | 23,868 | 49227889   | 1-Etyl-3-metylbenzen            | 0,76  | C9       |
| 31 | 24,381 | 299884596  | 1,3,5-Trimetylbenzen            | 4,65  | C9       |
| 32 | 28,561 | 102428364  | 1,4-Dietylbenzen                | 1,59  | C10 7,35 |
| 33 | 28,930 | 74548481   | 1-Metyl-4-propylbenzen          | 1,16  | C10      |

|    |              |               |                              |       |          |
|----|--------------|---------------|------------------------------|-------|----------|
| 34 | 29,359       | 92826453      | 1,3-Dietylbenzen             | 1,44  | C10      |
| 35 | 30,670       | 97745750      | 1-Etyl-2,3-dimetylbenzen     | 1,52  | C10      |
| 36 | 33,494       | 106588822     | 1-Metyl-2-(2-propenyl)benzen | 1,65  | C10      |
| 37 | 41,525       | 162311180     | 1,2-DiMetylinđan             | 2,52  | C11 3,50 |
| 38 | 61,479       | 51586655      | 1-Metylđaphtalen             | 0,80  | C11      |
| 39 | 61,574       | 11789869      | 1-Metylđaphtalen             | 0,18  | C11      |
|    | tổng cộng    | 6451633783    |                              |       |          |
|    | % nhiên liệu | 99,72         |                              |       |          |
|    |              |               |                              |       |          |
|    | C2+          | Hợp chất thơm |                              | 66,02 |          |
|    |              | Olefin        |                              | 8,69  |          |
|    |              | Parafin       |                              | 5,81  |          |
|    |              | i-Parafin     |                              | 14,58 |          |
|    |              | Đaphtalen     |                              | 0,98  |          |

Bảng 10. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác 1-heptanol

V-ZSM5 1-heptanol 1,0ml/giờ V-ZSM5 mới

| Đỉnh | Thời gian |           |                            |      |    |       |
|------|-----------|-----------|----------------------------|------|----|-------|
| #    | duy trì   | Diện tích | ID                         | %    |    |       |
| 1    | 1,315     | 2069361   | N2                         |      |    |       |
| 2    | 2,276     | 10596794  | etylen                     | 0,17 | C2 | 0,17  |
| 3    | 6,346     | 244017772 | Propen                     | 4,02 | C3 | 5,29  |
| 4    | 6,656     | 76955284  | Propan                     | 1,27 | C3 |       |
| 5    | 9,461     | 275840219 | Isobutan                   | 4,55 | C4 | 15,36 |
| 6    | 9,721     | 380873144 | 2-Metyl-1-propen           | 6,28 | C4 |       |
| 7    | 10,077    | 191541732 | 2-Buten                    | 3,16 | C4 |       |
| 8    | 10,222    | 82951384  | (E)-2-Buten                | 1,37 | C4 |       |
| 9    | 11,953    | 10984477  | 2-Metyl-1-buten            | 0,18 | C5 | 11,03 |
| 10   | 12,291    | 166208231 | 2-Metylbutan               | 2,74 | C5 |       |
| 11   | 12,420    | 112815654 | 2-Metyl-2-buten            | 1,86 | C5 |       |
| 12   | 12,581    | 59040929  | cis-1,2-Dimetylđyclopropan | 0,97 | C5 |       |

|    |        |           |                            |       |     |       |
|----|--------|-----------|----------------------------|-------|-----|-------|
| 13 | 12,675 | 319636428 | 2-Metyl-2-buten            | 5,27  | C5  |       |
| 14 | 14,259 | 30497097  | (Z)-4-Metyl-2-penten       | 0,50  | C6  | 7,00  |
| 15 | 14,461 | 79073039  | 2-Metylpentan              | 1,30  | C6  |       |
| 16 | 14,651 | 109280309 | (E)-3-Metyl-2-penten       | 1,80  | C6  |       |
| 17 | 14,727 | 38694370  | 3-Metylenpentan            | 0,64  | C6  |       |
| 18 | 14,819 | 74609172  | (E)-3-Metyl-2-penten       | 1,23  | C6  |       |
| 19 | 14,863 | 75048180  | 3,3-Dimetyl-1-xyclobuten   | 1,24  | C6  |       |
| 20 | 15,184 | 17083427  | Benzen                     | 0,28  | C6  |       |
| 21 | 15,895 | 19482571  | (E)-4,4-Dimetyl-2-penten   | 0,32  | C7  | 12,74 |
| 22 | 16,072 | 12210792  | (E)-2-Hepten               | 0,20  | C7  |       |
| 23 | 16,168 | 18645439  | 3-Metyl-3-hexen            | 0,31  | C7  |       |
| 24 | 16,258 | 61912414  | 4,4-Dimetylxcyclopenten    | 1,02  | C7  |       |
| 25 | 16,368 | 78209680  | 2-Metylhexan               | 1,29  | C7  |       |
| 26 | 16,445 | 162106417 | 3-Metylhexan               | 2,67  | C7  |       |
| 27 | 16,684 | 83861374  | 4,4-Dimetylxcyclopenten    | 1,38  | C7  |       |
| 28 | 16,864 | 9070847   | Etylidenexyclopentan       | 0,15  | C7  |       |
| 29 | 16,946 | 28685305  | Xycloheptan                | 0,47  | C7  |       |
| 30 | 17,278 | 298503719 | Toluen                     | 4,92  | C7  |       |
| 31 | 17,759 | 19176807  | 1-Phenyl-1-buten           | 0,32  | C10 |       |
| 32 | 18,035 | 25595185  | 1,2,3-Trimetylxcyclopenten | 0,42  | C8  | 16,92 |
| 33 | 18,266 | 32778297  | 1,2,3-Trimetylxcyclopenten | 0,54  | C8  |       |
| 34 | 18,394 | 16951608  | 1-Phenyl-1-buten           | 0,28  | C10 |       |
| 35 | 18,478 | 21598628  | 1-Phenyl-1-buten           | 0,36  | C10 |       |
| 36 | 18,629 | 30162172  | Xycloocten                 | 0,50  | C8  |       |
| 37 | 19,063 | 26713507  | 1,4-Dimetyl-1-xyclohexen   | 0,44  | C8  |       |
| 38 | 19,639 | 110103924 | Etylbenzen                 | 1,82  | C8  |       |
| 39 | 19,770 | 682151582 | 1,3-Dimetylbenzen          | 11,25 | C8  |       |
| 40 | 20,324 | 118475680 | o-Xylen                    | 1,95  | C8  |       |
| 41 | 23,147 | 394946090 | 1-Etyl-4-metylbenzen       | 6,51  | C9  | 15,35 |
| 42 | 23,370 | 318971487 | 1-Etyl-4-metylbenzen       | 5,26  | C9  |       |
| 43 | 23,861 | 28447792  | 1-Etyl-4-metylbenzen       | 0,47  | C9  |       |
| 44 | 24,390 | 188189397 | 1,3,5-Trimetylbenzen       | 3,10  | C9  |       |

|                                      |        |            |                          |      |     |      |
|--------------------------------------|--------|------------|--------------------------|------|-----|------|
| 45                                   | 28,547 | 77917138   | 1,3-Dietylbenzen         | 1,29 | C10 | 8,79 |
| 46                                   | 28,933 | 74669522   | 1-Metyl-4-propylbenzen   | 1,23 | C10 |      |
| 47                                   | 29,371 | 122113483  | 1,3-Dietylbenzen         | 2,01 | C10 |      |
| 48                                   | 30,675 | 81875683   | 1,2-Dimetyl-4-etylbenzen | 1,35 | C10 |      |
| 49                                   | 33,516 | 118341019  | 4-Metylinđan             | 1,95 | C10 |      |
| 50                                   | 38,193 | 177661799  | 1,7-Dimetylđaphtalen     | 2,93 | C12 | 3,22 |
| 51                                   | 38,948 | 17708249   | 1,7-Dimetylđaphtalen     | 0,29 | C12 |      |
| 1-Metyl-3-(1-metyl-2-propenyl)benzen |        |            |                          |      |     |      |
| 52                                   | 41,609 | 126971202  | propenyl)benzen          | 2,09 | C11 | 4,12 |
| 53                                   | 62,278 | 80461738   | Benzoxycloheptatrien     | 1,33 | C11 |      |
| 54                                   | 62,364 | 19465783   | Benzoxycloheptatrien     | 0,32 | C11 |      |
| 55                                   | 62,541 | 22806174   | Benzoxycloheptatrien     | 0,38 | C11 |      |
| tổng cộng                            |        | 6062690146 |                          |      |     |      |
| % nhiên liệu                         |        | 99,83      |                          |      |     |      |

|          |           |       |
|----------|-----------|-------|
| Hợp chất |           |       |
| C2+      | thơm      | 48,48 |
|          | Olefin    | 32,69 |
|          | Parafin   | 1,89  |
|          | i-Parafin | 13,53 |
|          | Naphtalen | 3,22  |

Bảng 11. Mức phân bố sản phẩm hydrocacbon thu được từ quy trình chuyển hóa có xúc tác 1-octanol

V-ZSM5 1-octanol 1,0ml/giờ

V-ZSM5 mới

| Đỉnh # | Thời gian duy trì | Diện tích | ID       | %    |    |       |
|--------|-------------------|-----------|----------|------|----|-------|
| 1      | 1,315             | 2753815   | N2       |      |    |       |
| 2      | 2,275             | 11972060  | etylen   | 0,17 | C2 | 0,17  |
| 3      | 6,349             | 182107802 | Propen   | 2,63 | C3 | 3,63  |
| 4      | 6,459             | 17063391  | H2O      | 0,25 |    |       |
| 5      | 6,659             | 69288274  | Propan   | 1,00 | C3 |       |
| 6      | 9,464             | 262254399 | Isobutan | 3,79 | C4 | 12,77 |

|    |        |           |                             |      |    |       |
|----|--------|-----------|-----------------------------|------|----|-------|
| 7  | 9,727  | 328035215 | 2-Metylpropen               | 4,74 | C4 |       |
| 8  | 10,079 | 207048570 | (E)-2-Buten                 | 2,99 | C4 |       |
| 9  | 10,225 | 87248173  | (E)-2-Buten                 | 1,26 | C4 |       |
| 10 | 11,955 | 12218575  | 2-Metyl-1-buten             | 0,18 | C5 | 11,77 |
| 11 | 12,290 | 204427790 | 2-Metylbutan                | 2,95 | C5 |       |
| 12 | 12,421 | 133119491 | 2-Metyl-2-buten             | 1,92 | C5 |       |
| 13 | 12,581 | 66601798  | cis-1,2-Dimetylcyclopropan  | 0,96 | C5 |       |
| 14 | 12,675 | 398769012 | 2-Metyl-2-buten             | 5,76 | C5 |       |
| 15 | 14,261 | 35333393  | (Z)-4-Metyl-2-penten        | 0,51 | C6 | 7,53  |
| 16 | 14,461 | 112312328 | 2-Metylpentan               | 1,62 | C6 |       |
| 17 | 14,651 | 130583145 | (E)-3-Metyl-2-penten        | 1,89 | C6 |       |
| 18 | 14,727 | 43990792  | 3-Metylenpentan             | 0,64 | C6 |       |
| 19 | 14,865 | 182305876 | 3,3-Dimetyl-1-xyclobuten    | 2,63 | C6 |       |
| 20 | 15,185 | 9091364   | Benzen                      | 0,13 | C6 |       |
| 21 | 15,387 | 7975132   | Xyclohexen                  | 0,12 | C6 |       |
| 22 | 15,901 | 12498170  | (E)-3-Hepten                | 0,18 | C7 | 10,24 |
| 23 | 16,074 | 7516940   | (E)-4,4-Dimetyl-2-penten    | 0,11 | C7 |       |
| 24 | 16,171 | 10266713  | (Z)-3-Metyl-2-hexen         | 0,15 | C7 |       |
| 25 | 16,265 | 71356913  | 4,4-Dimetylcyclopenten      | 1,03 | C7 |       |
| 26 | 16,372 | 71236965  | 2-Metylhexan                | 1,03 | C7 |       |
| 27 | 16,444 | 123586327 | 3-Metylhexan                | 1,78 | C7 |       |
| 28 | 16,689 | 110294449 | 4,4-Dimetylcyclopenten      | 1,59 | C7 |       |
| 29 | 16,867 | 11831994  | Etylidenexyclopentan        | 0,17 | C7 |       |
| 30 | 16,949 | 37072278  | Xycloheptan                 | 0,54 | C7 |       |
| 31 | 17,282 | 253190159 | Toluen                      | 3,66 | C7 |       |
| 32 | 17,555 | 11246234  | 5,5-Dimetyl-1,3-Hexadien    | 0,16 | C8 | 20,91 |
| 33 | 17,739 | 31406430  | 5,5-Dimetyl-1,3-Hexadien    | 0,45 | C8 |       |
| 34 | 18,034 | 69362186  | 2,5-Dimetyl-2,4-Hexadien    | 1,00 | C8 |       |
| 35 | 18,264 | 74716725  | 1,2,3-Trimetylcyclopenten   | 1,08 | C8 |       |
| 36 | 18,398 | 90556817  | 2-Metylheptan               | 1,31 | C8 |       |
| 37 | 18,483 | 81596958  | 3-Etylhexan                 | 1,18 | C8 |       |
| 38 | 18,628 | 64421988  | 1-Metyl-2-metylenxyclohexan | 0,93 | C8 |       |



|    |              |            |                               |       |          |
|----|--------------|------------|-------------------------------|-------|----------|
| 39 | 18,891       | 35693086   | 3-Etylhexan                   | 0,52  | C8       |
| 40 | 19,060       | 54425049   | 1,4-Dimetyl-1-xyclohexen      | 0,79  | C8       |
| 41 | 19,519       | 9790902    | 1,2-Dimetylxyclohexen         | 0,14  | C8       |
| 42 | 19,641       | 97391737   | Etylbenzen                    | 1,41  | C8       |
| 43 | 19,775       | 756361951  | 1,3-Dimetylbenzen             | 10,92 | C8       |
| 44 | 20,330       | 70973947   | p-Xylen                       | 1,02  | C8       |
| 45 | 21,030       | 14645002   | 3,3,5-Trimetylxyclohexen      | 0,21  | C9 16,26 |
| 46 | 21,247       | 5154430    |                               | 0,07  | C9       |
| 47 | 23,142       | 400895855  | 1-Etyl-4-metylbenzen          | 5,79  | C9       |
| 48 | 23,357       | 506387684  | 1-Etyl-4-metylbenzen          | 7,31  | C9       |
| 49 | 24,395       | 198856673  | 1,3,5-Trimetylbenzen          | 2,87  | C9       |
| 50 | 28,519       | 101047815  | 1,3-Dietylbenzen              | 1,46  | C10 8,21 |
| 51 | 28,904       | 127766865  | 1-Metyl-4-propylbenzen        | 1,85  | C10      |
| 52 | 29,336       | 206215236  | 1,3-Dietylbenzen              | 2,98  | C10      |
| 53 | 30,665       | 86602696   | 1-Isopropyl-2-metylbenzen     | 1,25  | C10      |
| 54 | 33,486       | 46744377   | 1-metyl-4-(2-propenyl)-Benzen | 0,68  | C10      |
| 55 | 36,418       | 419441891  | 1,4,5-Trimetyl naphtalen      | 6,06  | C13 8,04 |
| 56 | 41,628       | 137263999  | 1-Isopropylnaphtalen          | 1,98  | C13      |
| 57 | 62,492       | 32344606   | Benzoxycloheptatrien          | 0,47  | C11 0,47 |
|    | tổng cộng    | 6924845236 |                               |       |          |
|    | % nhiên liệu | 99,83      |                               |       |          |

|     |               |        |
|-----|---------------|--------|
| C2+ | Hợp chất thơm | 42,001 |
|     | Olefin        | 31,514 |
|     | Parafin       | 1,707  |
|     | i-Parafin     | 16,068 |
|     | Naphtalen     | 8,039  |

Mặc dù đã được thể hiện và được mô tả rằng hiện tại các nội dung trong sáng chế được coi là các phương án được ưu tiên của sáng chế, nhưng chuyên gia trong lĩnh vực kỹ thuật này có thể tiến hành các thay đổi và sửa đổi bất kỳ mà vẫn thuộc phạm vi của sáng chế được xác định bởi yêu cầu bảo hộ đi kèm.

## YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Phương pháp sản xuất nguyên liệu hydrocacbon, trong đó phương pháp này bao gồm bước cho dung dịch nước hoặc hệ hai pha chứa nước chứa ít nhất một rượu no không vòng có ít nhất từ 3 đến tối đa 10 nguyên tử cacbon tiếp xúc với chất xúc tác zeolit mang kim loại chứa ion kim loại vanadi và ZSM-5 ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ ít nhất là 100°C đến 550°C để tạo ra nguyên liệu hydrocacbon chứa etylen với lượng nhỏ hơn 1% thể tích, hợp chất hydrocacbon có ít nhất 8 nguyên tử cacbon với lượng ít nhất là 35% thể tích, và benzen với lượng không quá 1% thể tích, trong đó zeolit mang kim loại không bao gồm lantan.
2. Phương pháp theo điểm 1, trong đó ít nhất một rượu no không vòng này là rượu mạch thẳng.
3. Phương pháp theo điểm 2, trong đó rượu mạch thẳng này được chọn từ *n*-propanol, *n*-butanol, *n*-pentanol, *n*-hexanol, *n*-heptanol, *n*-octanol, *n*-nonanol, và *n*-decanol.
4. Phương pháp theo điểm 1, trong đó ít nhất một rượu no không vòng này là rượu mạch nhánh.
5. Phương pháp theo điểm 4, trong đó rượu mạch nhánh này được chọn từ isopropanol, isobutanol, sec-butanol, *t*-butanol, isopentanol, 2-pentanol, 3-pentanol, rượu neopentyl, isohexanol, 2-hexanol, 3-hexanol, isoheptanol, 2-heptanol, 3-heptanol, 4-heptanol, 6-metylheptanol, và 2-etylhexanol.
6. Phương pháp theo điểm 1, trong đó ít nhất một rượu no không vòng này có mặt trong dung dịch nước hoặc hệ hai pha với nồng độ không quá 40%.
7. Phương pháp theo điểm 6, trong đó nồng độ này là không quá 20%.
8. Phương pháp theo điểm 6, trong đó nồng độ này là không quá 10%.
9. Phương pháp theo điểm 6, trong đó dung dịch nước này là dung dịch nước bão hòa chứa ít nhất một rượu no không vòng.

10. Phương pháp theo điểm 1, trong đó ít nhất một rượu no không vòng này là một thành phần của dòng lên men khi được tiếp xúc với chất xúc tác zeolit mang kim loại này.
11. Phương pháp theo điểm 1, trong đó nguyên liệu hydrocacbon này hầu như tương ứng với nhiên liệu hóa dầu.
12. Phương pháp theo điểm 11, trong đó nhiên liệu hóa dầu này được chọn từ xăng, dầu hỏa, diesel, và nhiên liệu phản lực.
13. Phương pháp theo điểm 1, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước chưng cất nguyên liệu hydrocacbon này để thu được phân đoạn chứa nguyên liệu hydrocacbon này.
14. Phương pháp theo điểm 1, trong đó phương pháp này sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa hợp chất hydrocacbon có ít nhất 8 nguyên tử cacbon với lượng ít nhất là 40% thể tích.
15. Phương pháp theo điểm 1, trong đó phương pháp này sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa hợp chất hydrocacbon có ít nhất 8 nguyên tử cacbon với lượng ít nhất là 50% thể tích.
16. Phương pháp theo điểm 1, trong đó phương pháp này cũng sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa hợp chất hydrocacbon có 3 nguyên tử cacbon với lượng nhỏ hơn 8% thể tích.
17. Phương pháp theo điểm 1, trong đó phương pháp này cũng sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa hợp chất hydrocacbon có 3 nguyên tử cacbon với lượng nhỏ hơn 5% thể tích.
18. Phương pháp theo điểm 1, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước xử lý nguyên liệu hydrocacbon bằng chất xúc tác alkyl hóa benzen trong các điều kiện thích hợp để alkyl hóa benzen, để làm giảm lượng benzen trong phân đoạn hydrocacbon này.
19. Phương pháp sản xuất nguyên liệu hydrocacbon, trong đó phương pháp này bao gồm bước cho ít nhất một rượu no không vòng tiếp xúc với chất xúc tác zeolit mang kim loại ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ ít nhất 100°C đến 550°C, trong đó kim loại

này là ion kim loại mang điện tích dương, chất xúc tác zeolit mang kim loại này có hoạt tính xúc tác để chuyển hóa rượu này thành nguyên liệu hydrocacbon, và rượu no không vòng này được chọn từ nhóm bao gồm *n*-pentanol, *n*-hexanol, *n*-heptanol, *n*-octanol, *n*-nonanol, *n*-decanol, isopentanol, 2-pentanol, 3-pentanol, rượu neopentyllic, isohexanol, 2-hexanol, 3-hexanol, isoheptanol, 2-heptanol, 3-heptanol, 4-heptanol, 6-metylheptanol, và 2-etylhexanol, trong đó phương pháp này sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon, và nguyên liệu hydrocacbon này chứa etylen với lượng nhỏ hơn 1% thể tích, các hợp chất hydrocacbon có ít nhất 8 nguyên tử cacbon với lượng ít nhất là 35% thể tích, và benzen với lượng không quá 1% thể tích, và trong đó nguyên liệu hydrocacbon này hầu như tương ứng với nhiên liệu hóa dầu.

20. Phương pháp theo điểm 19, trong đó ít nhất một rượu no không vòng là một thành phần của dung dịch nước hoặc hệ hai pha.

21. Phương pháp theo điểm 19, trong đó ít nhất một rượu no không vòng này là một thành phần của dung dịch nước hoặc hệ hai pha với nồng độ không quá 40%.

22. Phương pháp theo điểm 21, trong đó nồng độ này là không quá 20%.

23. Phương pháp theo điểm 21, trong đó nồng độ này là không quá 10%.

24. Phương pháp theo điểm 21, trong đó dung dịch nước này là dung dịch nước bão hòa chứa ít nhất một rượu no không vòng.

25. Phương pháp theo điểm 20, trong đó ít nhất một rượu no không vòng này là thành phần của dòng lên men khi tiếp xúc với chất xúc tác zeolit mang kim loại.

26. Phương pháp theo điểm 19, trong đó kim loại này được chọn từ kim loại kiềm, kim loại kiềm thổ, đồng, sắt, vanadi, kẽm, titan, cadimi, gali, indi, và hỗn hợp của chúng.

27. Phương pháp theo điểm 19, trong đó kim loại này được chọn từ đồng, sắt và vanadi.

28. Phương pháp theo điểm 19, trong đó zeolit này bao gồm pentasil zeolit.

29. Phương pháp theo điểm 28, trong đó pentasil zeolit này bao gồm ZSM5.

30. Phương pháp theo điểm 19, trong đó chất xúc tác zeolit mang kim loại này bao gồm Cu-ZSM5.
31. Phương pháp theo điểm 19, trong đó chất xúc tác zeolit mang kim loại này bao gồm V-ZSM5.
32. Phương pháp theo điểm 19, trong đó trong đó nhiên liệu hóa dầu này được chọn từ xăng, dầu hỏa, diesel, và nhiên liệu phản lực.
33. Phương pháp theo điểm 19, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước chưng cất nguyên liệu hydrocacbon để thu được phân đoạn chứa nguyên liệu hydrocacbon này.
34. Phương pháp theo điểm 19, trong đó phương pháp này sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa hợp chất hydrocacbon có ít nhất 8 nguyên tử cacbon với lượng ít nhất là 40% thể tích.
35. Phương pháp theo điểm 19, trong đó trong đó phương pháp này sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa hợp chất hydrocacbon có ít nhất 8 nguyên tử cacbon với lượng ít nhất là 50% thể tích.
36. Phương pháp theo điểm 19, trong đó phương pháp này cũng sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa hợp chất hydrocacbon có 3 nguyên tử cacbon với lượng nhỏ hơn 8% thể tích.
37. Phương pháp theo điểm 19, trong đó phương pháp này sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocacbon chứa hợp chất hydrocacbon có 3 nguyên tử cacbon với lượng nhỏ hơn 5% thể tích.
38. Phương pháp theo điểm 19, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước xử lý nguyên liệu hydrocacbon bằng chất xúc tác alkyl hóa benzen trong các điều kiện thích hợp để alkyl hóa benzen, để làm giảm lượng benzen trong nguyên liệu hydrocacbon này.
39. Phương pháp theo điểm 19, trong đó zeolit mang kim loại này không bao gồm lantan.

40. Phương pháp theo điểm 19, trong đó phương pháp này sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocarbon chứa hợp chất hydrocarbon có ít nhất tám nguyên tử cacbon với lượng ít nhất 40% thể tích và chứa hợp chất hydrocarbon có 3 nguyên tử cacbon với lượng nhỏ hơn 8% thể tích.

41. Phương pháp theo điểm 19, trong đó phương pháp này sản xuất trực tiếp nguyên liệu hydrocarbon chứa hợp chất hydrocarbon có ít nhất 8 nguyên tử cacbon với lượng ít nhất là 50% thể tích và hợp chất hydrocarbon có ba nguyên tử cacbon với lượng ít hơn 5% thể tích.