

NGHIÊN CỨU CHẾ TẠO HỆ XÚC TÁC AXIT RẮN BENTONIT – SILICA MAO QUẢN TRUNG BÌNH

CHO PHẢN ỨNG CRACKING HYDROCACBON NẶNG

1. Họ và tên nghiên cứu sinh: **VÕ THỊ MỸ NGA**

2. Giới tính: Nữ

3. Ngày sinh: 04/11/1982

4. Nơi sinh: Tuy Hòa, Phú Yên.

5. Quyết định công nhận nghiên cứu sinh: Số 3201/QĐ – SĐH ngày 08/11/2010 của Giám đốc Đại học Quốc gia Hà Nội.

6. Các thay đổi trong quá trình đào tạo: Không.

7. Tên đề tài luận án: “Nghiên cứu chế tạo hệ xúc tác axit rắn Bentonit – silica mao quản trung bình cho phản ứng cracking hydrocacbon nặng”

8. Chuyên ngành: Hóa dầu

9. Mã số: 62440115

10. Cán bộ hướng dẫn khoa học: PGS.TS Hoa Hữu Thu, TS. Nguyễn Thanh Bình

11. Tóm tắt các kết quả mới của luận án:

a) Các kết quả chính

- Đã tổng hợp thành công các vật liệu mới bentonit Di Linh – silica MQTB gồm : BHSMC, BHSMP, BHMeSMC (Me= Al, Zr, Fe, Sn) theo phương pháp một bước khá đơn giản.

- Đã khảo sát và tìm được các điều kiện tổng hợp vật liệu BHSMC, bao gồm : pH = 11 ; nhiệt độ già hóa : 100°C ; thời gian già hóa : 40 giờ ; tỷ lệ khối lượng Si/Bent=4,6 ; tỷ lệ chất HĐBM/ Bent = 2,4.

- Đã biến tính thành công vật liệu BHSMC và BHSMP bằng một số kim loại Al, Zr, Fe, Sn. Hoạt tính xúc tác của chúng trong phản ứng cracking Wax ở điều kiện thí nghiệm (nhiệt độ phản ứng 460°C và thời gian tiếp xúc 24s) được sắp xếp theo trật tự tăng dần như sau : BHSn(10)SMC < BHFe(10)SMC < BH < BHSMP < BHSMC < BHZr(10)SMC < BHAl(10)SMC. Với hiệu suất xăng 72,76% và độ chuyển hóa 88,61% đối với BHAl(10)SMC.

- Đã đánh giá độ hoạt động xúc tác cracking Cumen của các vật liệu xúc tác Bentonit – silica MQTB để từ đó đánh giá độ hoạt động xúc tác cracking Wax. Vật liệu tổng hợp được BHSMC cho hiệu suất xăng cao hơn so với xúc tác DQS thải trong cùng điều kiện phản ứng ở 460°C và thời gian tiếp xúc 24s là 9,68% và độ

chuyển hóa cao hơn khoảng 8,63 % .

- Vật liệu bền với điều kiện phản ứng và sau khi đốt cốc, vật liệu bền với quy trình tái sinh (bền sau 3 lần thực hiện phản ứng), hiệu suất xăng đạt được 74,58% và độ chuyển hóa 89,53% đối với xúc tác BSMCTS2 ở 520°C, thời gian tiếp xúc 24s.

b) Những đóng góp mới

- Lần đầu tiên, vật liệu composit bentonit-silica MQTB được nghiên cứu và tổng hợp ở Việt Nam từ nguồn bentonit Di Linh, Lâm Đồng, Việt Nam.

- Quá trình hình thành vật liệu này đã được chứng minh là có sự tương tác giữa các lớp bentonit và silica của MQTB, hình thành nên vật liệu có tính axit, có đường kính mao quản và diện tích bề mặt lớn hơn so với zeolit.

- Sự kết hợp bentonit và silica MQTB đã khai thác được các ưu điểm của cả hai dạng vật liệu này.

12. Khả năng ứng dụng thực tiễn:

Để tiết kiệm nguồn nguyên, nhiên liệu hóa thạch đang được sử dụng rất lớn về lượng trên Thế giới cũng như ở Việt Nam. Công nghiệp lọc dầu hiện nay tận dụng các nguyên liệu nặng, cặn dầu từ dầu mỏ (residue) làm nguyên liệu đầu chế biến thành các sản phẩm có giá trị cao hơn như xăng, các olefin nhẹ ... cần thiết cho giao thông vận tải, cho công nghiệp hóa dầu và công nghiệp hóa học... Quá trình chế biến các nguồn nguyên liệu này chính là cracking xúc tác, quá trình bẻ gãy các liên kết C-C trong các phân tử lớn thành các phân tử nhỏ hữu ích từ C3 đến C10 có giá trị kinh tế cao. Chất lượng của các phân đoạn sản phẩm trong quá trình này phụ thuộc vào xúc tác được sử dụng. Đó là các xúc tác axit rắn, có mao quản micro – meso, có khả năng xúc tác cho các quá trình cracking liên kết C-C sơ cấp cũng như thứ cấp và chịu được sự ngộ độc bởi các kim loại nặng như Ni, V, ... Các kết quả nghiên cứu tính chất cấu trúc, hình thái bề mặt, độ hoạt động xúc tác cracking phân tử mô hình Cumen và cracking Wax với khối lượng riêng $d_{15} = 0,8431\text{g/cm}^3$ đã khẳng định vật liệu xúc tác mới Bentonit – silica MQTB có cấu trúc meso và tính chất thích hợp làm xúc tác axit bẻ gãy các liên kết C - C trong các phân tử hydrocacbon kích thước phân tử lớn, có khối lượng phân tử trung bình ~ 500 đvc.

13. Các hướng nghiên cứu tiếp theo:

- Đánh giá độ bền của xúc tác tổng hợp được.

- Nghiên cứu hướng kết hợp xúc tác tổng hợp được với xúc tác cracking công nghiệp để hoàn thiện thêm một số đặc trưng của xúc tác, đáp ứng các yêu cầu mới của xúc tác cracking trong công nghiệp dầu khí.

14. Các công trình công bố liên quan đến luận án:

[1] Võ Thị Mỹ Nga, Nguyễn Thanh Bình, Nguyễn Thị Thu Hương, Đặng Văn Long, Hoa Hữu Thu (2010), "Biến tính bentonit Di Linh bằng silica mao quản trung bình thành vật liệu xúc tác axit rắn cho phản ứng

cracking cumen”, *Tạp chí Hóa học* T.48 (4C), tr.18-25.

[2] Võ Thị Mỹ Nga, Hoa Hữu Thu, Nguyễn Thanh Bình, Lê Văn Quý (2011), “Nghiên cứu điều chế một số hệ xúc tác bentonit Diling – vật liệu mao quản trung bình dùng làm xúc tác cracking cumen”, *Tạp chí Hóa học* T.49 2(ABC), tr.514-519.

[3] Võ Thị Mỹ Nga, Hoa Hữu Thu, Nguyễn Thanh Bình, Đặng Văn Long, Lê Văn Quý (2011), “Tổng hợp và nghiên cứu các đặc trưng cấu trúc và tính chất xúc tác của các vật liệu bentonit Diling – silica mao quản trung bình trong phản ứng cracking cumen”, *Tạp chí Hóa học* T.49 (5AB), tr. 463-469.

[4] Võ Thị Mỹ Nga, Nguyễn Thị Thu Hương, Lê Thanh Sơn, Nguyễn Thanh Bình, Hoa Hữu Thu, Đỗ Trung Hiếu, Trương Quang Trường, Trương Đình Đức (2012), “Nghiên cứu chế tạo sét chống oxit kim loại được anion hóa làm xúc tác cho đồng phân hóa n-parafin, Phần 1. Tổng hợp và nghiên cứu các đặc trưng cấu trúc và tính chất bề mặt sét chống oxit kim loại được sunfat hóa”, *Tạp chí khoa học và công nghệ* T.50 (3C), tr. 583-590.

[5] Võ Thị Mỹ Nga, Nguyễn Thị Thu Hương, Lê Thanh Sơn, Nguyễn Thanh Bình, Hoa Hữu Thu, Đỗ Trung Hiếu, Trương Quang Trường, Trương Đình Đức (2012), “Nghiên cứu chế tạo sét chống oxit kim loại được anion hóa làm xúc tác cho đồng phân hóa n-parafin. Phần 2. Nghiên cứu hoạt tính sét chống oxit kim loại siêu axit trong phản ứng đồng phân hóa n- hexan”, *Tạp chí khoa học và công nghệ* T.50 (3C), tr. 591-597.

[6] Vo Thi My Nga, Nguyen Thanh Binh, Le Thanh Son, Hoa Huu Thu, Dang Thanh Tung, Tran Van Tri, Do Trung Hieu, Nguyen Thi Minh Thu (2012), “Study on One-Step Synthesis of Mesostructured Silica-Pillared Montmorillonite and Their Catalytic Activity in Wax Cracking Reaction”, *Proceedings, ISBN: 978-604-73-1496-6, ICAEF 2012, pp.176-181.*

[7] Võ Thị Mỹ Nga, Nguyễn Thanh Bình, Lê Thanh Sơn, Hoa Hữu Thu, Đặng Thanh Tùng, Trần Văn Trí, Nguyễn Sura, Đỗ Trung Hiếu (2013), “Nghiên cứu sự hình thành cấu trúc và đánh giá hoạt tính xúc tác của Bentonit – silica MQTB trong phản ứng cracking với Cumene và Wax, Phần 2. Đánh giá hoạt tính xúc tác của Bentonit – silica MQTB trong phản ứng cracking với Cumene và Wax”, *Tạp chí hóa học* T.51 (2C), tr. 681-685.

[8] Võ Thị Mỹ Nga, Nguyễn Thanh Bình, Lê Thanh Sơn, Hoa Hữu Thu, Đỗ Trung Hiếu, Nguyễn Thị Minh Thư, Đặng Thanh Tùng, Nguyễn Lê Nhơn (2013), “Khảo sát độ chuyển hóa Wax trên bentonit silica mao quản trung bình biến tính kim loại chuyển tiếp”, *Tạp chí Xúc tác và Hấp phụ* T2 (2), tr. 128-135.

[9] Võ Thị Mỹ Nga, Nguyễn Thanh Bình, Lê Thanh Sơn, Hoa Hữu Thu, Trương Đình Đức, Bùi Vĩnh Tường, Hà Lưu Mạnh Quân, Đỗ Trung Hiếu (2013), “Nghiên cứu sự hình thành cấu trúc của Bentonit – silica MQTB”, *Tạp chí Xúc tác và Hấp phụ* T2 (3), tr. 130-135.