

**ПРЕВРАЩЕНИЕ ПРИРОДНОГО ГАЗА НА МЕТАЛЛИЧЕСКИХ
ЦЕОЛИТНЫХ КАТАЛИЗАТОРАХ**Ахмедова Н. Ф.¹, Ганбарова Е. А.², *Исмаилова С. Б.*¹, Мамедов С. Э.¹, Гусейнова С. Э.¹¹Бакинский Государственный Университет²Нахичеванский Государственный Университет

n_akhmed@mail.ru

Одним из решений проблемы поиска альтернативного сырья для получения продуктов нефтехимической промышленности, может стать вовлечение в переработку природного газа. Процесс ароматизации компонентов природного газа протекает в присутствии различных каталитических систем, среди которых наиболее эффективными считаются высококремнеземные цеолиты типа ZSM, модифицированные переходными металлами.

Целью данной работы явилось исследование каталитических свойств полиметаллических катализаторов в процессе ароматизации компонентов природного газа.

Для исследования использовали цеолит типа ZSM-5 с мольным отношением $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ равным 33. Катионные формы цеолита (CdZSM-5 и ZnZSM-5) получали методом ионного обмена с использованием водных растворов ацетатов кадмия и цинка. Полиметаллические катализаторы готовили путем механического смешения CdZSM-5 или ZnZSM-5 с карбонатом лантана и карбонилем вольфрама с последующим прокаливанием приготовленных смесей при температуре 550 °C в течение 3 ч. В качестве сырья использовали природный газ состава (мас.%): метан – 84,1; этан – 4,5; пропан – 6,7 %; бутаны – 4,2 %; пентаны – 0,1. Конверсию природного газа проводили на проточной установке в интервале температур 600-700 °C и объёмной скорости 800-1200 ч⁻¹.

Немодифицированный HZSM-5 проявляет невысокую активность: конверсия природного газа при 700-750 °C и 1000 ч⁻¹ составляет 13,2-14,0 %, а выход ароматических углеводородов – 6,1-6,2 мас.%. HZSM-5 проявляет низкую стабильность: при увеличении продолжительности работы, его активность постепенно снижается и через 5 часов катализатор практически теряет свою активность. Введение в состав цеолита 4,0 мас.% W заметно повышает его активность. При температуре реакции 750 °C на образце, содержащем 4,0 мас.% W выход бензола и нафталина достигает 10,9 мас.% и 18,3 мас.% соответственно. При температуре 750 °C конверсия природного газа достигает 38,19 %, а выход ароматических углеводородов возрастает до 31,8 мас.%. Введение в состав биметаллического катализатора 4,0 % W CdZSM-5 и 4 % W ZnZSM-5 лантана в количестве до 1,5 мас.% приводит к повышению, как степени превращения природного газа, так и выхода ароматических углеводородов. На полиметаллических цеолитных катализаторах 4,0 % W CdZSM-5 и 4 % W ZnZSM-5 выход ароматических углеводородов возрастает до 34,5 мас.%. Дальнейшее увеличение концентрации лантана до 2,0 мас.% в полиметаллическом катализаторе приводит к снижению выхода ароматических углеводородов до 31,8 мас.%.

Следует отметить, что модифицирование W-ZSM-5, CdZSM-5 или ZnZSM-5 существенно повышает выход бензола, а также стабильность его работы. Полиметаллические катализаторы проявляют высокую активность и стабильность работы в течение 20 часов. Модифицирование ZSM-5 цеолита Cd и Zn существенно снижает концентрацию сильных брэнстедовских кислотных центров. Однако в результате модифицирования образуются новые более сильные льюисовские кислотные центры. Модифицирование W-H-ZSM-5 с Cd-ZSM-5 и Zn-ZSM-5 цеолитами приводит к дальнейшему перераспределению кислотных центров по силе и концентрации. В результате модифицирования происходит изменение соотношения слабых и сильных кислотных центров цеолита, что сказывается на его каталитических свойствах в превращении компонентов природного газа.

Таким образом, изучение совместного промотирующего влияния вольфрама и лантана на каталитические свойства CdZSM-5 и ZnZSM-5 в процессе конверсии природного газа показали, что добавки этих модификаторов приводят к повышению его активности и селективности в образовании ароматических углеводородов.