

## **НЕОКИСЛИТЕЛЬНАЯ КОНВЕРСИЯ МЕТАНА В АРОМАТИЧЕСКИЕ УГЛЕВОДОРОДЫ НА МОНОМЕТАЛЛИЧЕСКИХ МОЛИБДЕНСОДЕРЖАЩИХ КАТАЛИЗАТОРАХ**

### **Аннотация**

Исследовано влияние температуры и длительности опыта на степень конверсии метана и состав образующихся соединений в процессе его неокислительной переработки на  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  катализаторах с различным содержанием молибдена

**Ключевые слова:** метан, ZSM цеолит, катализатор.

**Tipek сөздері:** метан, ZSM цеолит, катализатор.

**Keywords:** methane, zeolite ZSM, catalyst.

Эффективная утилизация природного газа остается одной из давних проблем в нефтехимии. В последние годы рассматриваются различные маршруты как прямые, так и косвенные конверсии метана в продукты нефтехимического синтеза. Очень большие запасы метана, которые часто находятся в отдаленных регионах, могли бы служить в качестве сырья для производства химических веществ и в качестве источника энергии. Хотя метан в настоящее время используется в таких важных отраслях, как системы отопления домов и генерации водорода для синтеза аммиака, его потенциал для нефтехимии не реализован. Таким образом, природный газ будет приобретать все большее значение в качестве источника сырья для нефтехимического синтеза. Увеличение значимости  $\text{C}_1$  - химии приведет к более широкому химическому использованию природного газа в качестве альтернативного сырья для нефтехимической промышленности, постепенно заменяя быстро исчезающие ресурсы сырой нефти [1-4].

В данной работе представлены результаты исследования процесса неокислительной конверсии метана на  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3$  – катализаторах, с различным содержанием молибдена, промотированных цеолитом ZSM. Исследовано влияние концентрации молибдена в составе катализатора, температуры и продолжительности проведения реакции на степень превращения метана и состав образующихся соединений.

### **Экспериментальная часть**

Исследован процесс неокислительной конверсии метана на  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3$  – катализаторах, с различным содержанием молибдена, промотированных цеолитом ZSM. Процесс проводили в установке проточного типа, при варьировании температуры в пределах 600 – 800°C и  $P= 0,1$  МПа, соотношение метан : аргон = 1 : 1, объемная скорость подачи метана 100-400ч<sup>-1</sup>.

Катализаторы готовили методом пропитки  $\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  композицией водным раствором азотнокислой соли молибдена с последующей сушкой и прокаливанием в токе воздуха при  $550^\circ\text{C}$  в течение 5 ч. Содержание молибдена варьировали в пределах 1,0 – 7,0 %.

Состав исходных и образующихся соединений анализировали на хроматографе ЛХМ-8, колонка  $350 \cdot 0,5$  см, заполненная фазой: 15% ПЭГ- 20 000, нанесенный на полисорб -1. Структура и состояние активных центров -катализаторов исследованы с помощью электронной микроскопии и дифракции электронов [5-8].

### Результаты и обсуждение

Исследовано влияние температуры и длительности опыта на степень превращения метана и состав образующихся соединений в процессе его неокислительной конверсии на  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  катализаторах с различным содержанием молибдена.

Исследования показали, что 1%  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  – катализатор проявляет низкую активность в процессе неокислительной конверсии метана в интервале  $600-800^\circ\text{C}$ .

С увеличением содержания молибдена до 3% активность катализатора повышается (табл. 1).

При  $t=700^\circ\text{C}$  в первые 60 мин от начала реакции ( $\tau=60$  мин) конверсии метана на 3%  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  –катализаторе равна 18,7%, однако количество образующегося бензола незначительно 0,5%. По мере увеличения продолжительности протекания реакции конверсия метана снижается, выход ароматических соединений увеличивается. Т. е. имеет место период разработки (индукционный период), во время которого формируются поверхностные центры катализатора для активации молекул метана и образования ароматических соединений. При  $t=700^\circ\text{C}$  максимальная конверсия метана устанавливается через 120 мин и составляет 19,0%. В продуктах реакции содержится 22,1% бензола. Через 150 мин после начала реакции конверсии метана = 17,4%, количество бензола – 34,6%, появляется толуол (0,6-0,8%). При дальнейшем продолжении опыта катализатор сохраняет стабильную активность: при  $\tau=180$  мин конверсия  $\text{CH}_4$  - 17,8 %, содержание бензола равно 34,6%, толуола – 0,8 %. Следует отметить, что наряду с ароматическими соединениями, образуется водород и незначительные количества оксида углерода.

Повышение температуры до  $t=750^\circ\text{C}$  сопровождается увеличением конверсии метана: так при  $\tau=60$  мин конверсия метана, вводимого в реакцию, равна 21,8%. При  $\tau=90$  мин конверсия незначительно снижается – до 20,9%. Однако количество образующегося бензола в этих условиях несколько выше, чем при  $700^\circ\text{C}$ : 1,5% ( $\tau=60$  мин) и 10,1% ( $\tau=90$  мин). Максимальная конверсия процесса устанавливается при  $\tau=180$  мин – 15,7%, содержание бензола в катализате 35,3 - 37,9%, толуола – 1,7-1,8%.

Таблица 1 – Неокислительная конверсия метана на 3%  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  – катализаторе

Температура, $^\circ\text{C}$	$\tau$ ,	Конверсия	Состав катализата, %
-------------------------------	----------	-----------	----------------------

	мин	метана, %				
			метан	бензол	толуол	Ксилолы
700	60	18,7	99,5	0,5		
	90	15,1	95,7	4,3		
	120	19,0	77,9	22,1		
	150	17,4	64,8	34,6	0,6	
	180	17,8	64,6	34,6	0,8	
750	60	21,8	98,5	1,5		
	90	20,9	89,9	10,1		
	120	17,7	79,3	20,7		
	150	29,8	70,1	28,9	1,0	
	180	15,7	62,9	35,3	1,8	
	210	15,2	60,4	37,9	1,7	
800	60	16,8	88,8	11,2		
	90	16,9	63,3	36,1	0,6	
	120	13,7	59,1	39,9	1,0	
	150	12,5	60,5	35,1	3,2	1,2
	190	12,9	56,3	35,6	3,3	4,8
Объемная скорость подачи метана 200ч <sup>-1</sup>						

Данные, представленные в таблице 1, показывают, что при  $t_{оп}=800^{\circ}\text{C}$  длительность индукционного периода сокращается: уже при  $\tau=60$  мин конверсия  $\text{CH}_4 = 16,8\%$ , в продуктах реакции обнаружено  $11,2\%$  бензола. С течением времени конверсия метана снижается, достигая стационарного состояния ( $12,5\%$ ) через 150 мин. от начала реакции, наряду с бензолом ( $35,1\%$ ) и толуолом ( $3,2\%$ ), появляются ксилолы ( $1,2\%$ ).

Таким образом, при проведении процесса на  $3\% \text{ Mo/Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  –катализаторе и варьировании температуры в интервале  $700\text{-}800^{\circ}\text{C}$  величина стационарной конверсии метана снижается от  $17,4$  до  $12,9\%$ . С ростом температуры в продуктах реакции, кроме бензола, появляются его алкилпроизводные (толуол и ксилол).

Степень конверсии метана на  $7\% \text{ Mo/Al}_2\text{O}_3$  катализаторе при  $t=700^{\circ}\text{C}$  и  $W= (200\text{час}^{-1})$  повышается от  $3,8$  ( $\tau=30$  мин) до  $7,8\%$  ( $\tau=120$  мин), наблюдается увеличение количества бензола от  $0,8$  до  $3,5\%$ . Спустя 60 мин ( $\tau=180$  мин) конверсия составляет  $7,4\%$ , но при

этом количество бензола в катализате = 13,4%. В течение следующих 60 мин ( $\tau=240$  мин) конверсия  $\text{CH}_4$  не меняется, количество бензола несколько увеличивается – 19,4% (таблица 2). Необходимо отметить, что увеличение количества бензола при неизменной конверсии метана происходит за счет  $\text{C}_x$ - и  $\text{C}_x\text{H}_y$  – фрагментов, образующихся в первые моменты контакта метана с поверхностью катализатора [9-11].

При  $t_{\text{оп}}=750^\circ$  конверсия метана меняется от 10,4 ( $\tau=30$  мин) до 6,4-6,9% ( $\tau=180$ -220 мин), количество образующегося бензола достигает 36,1-35,9%.

Рост температуры до  $800^\circ\text{C}$  оказывает положительное влияние на конверсию метана: при  $\tau=90$  мин ее величина составляет 35,8%, концентрация бензола – 16,9%. Спустя 30-60 мин ( $\tau=120$  мин) конверсия стабилизируется – 24,2%, количество бензола растет до 24,7% (таблица 2).

Таблица 2 - Неокислительная конверсия метана на 7% Mo/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+ ZSM – катализаторе

Температура, °C	$\tau$ , мин	Конверсия метана, %	Состав катализата, %			
			метан	бензол	толуол	Ксилол
700	30	3,8	99,2	0,8		
	75	6,4	96,6	3,4		
	120	7,8	96,5	3,5		
	180	7,4	92,5	7,5		
	220	7,5	80,6	19,4		
750	30	10,4	89,6	10,4		
	75	9,5	90,5	9,5		
	120	7,8	79,5	20,5		
	180	6,4	63,0	36,1	0,9	
	220	6,9	62,5	35,9	1,6	
800	90	35,8	83,1	16,9	сл	сл
	120	24,2	73,3	24,7	сл	сл
	180	22,7	77,0	22,9	сл	сл
	220	22,7	77,0	22,9	сл	сл
Объемная скорость подачи метана $200\text{ч}^{-1}$						

Таким образом, анализ результатов, полученных при исследовании неокислительной конверсии метана на  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  –катализаторах с различным содержанием молибдена, показывает, что процесс имеет определенной индукционный период, длительность которого зависит от температуры. Стационарное состояние катализатора устанавливается через 90-120мин. от начала опыта. Наличие индукционного периода в процессе неокислительной конверсии метана отмечается многими исследователями [11-17]. С одной стороны, во время индукционного периода под воздействием реакционной среды формируется поверхность катализатора, т.е. устанавливается определенное окислительно-восстановительное равновесие компонентов активной фазы, стабилизируется структура и дисперсность центров, обеспечивающих активацию метана. С другой стороны, при хемосорбции метана на активных центрах катализатора имеет место диссоциация его молекулы с образованием углерода и  $\text{C}_x\text{H}_y$  – фрагментов. Причем, как показано в работах [11-17], углерод на поверхности  $\text{Mo}$ - содержащих катализаторов существует в двух формах, одна из которых блокирует кислотные центры в каналах цеолита, другая –восстанавливает кластеры молибдена и, в основном, локализуется на внешней поверхности цеолита.

Образование  $\text{C}$ -фрагментов осуществляется на наиболее активных центрах, блокируя диссоциативное направление адсорбции  $\text{CH}_4$  – молекул, при одновременном снижении конверсии метана, и способствует усилению ассоциативных процессов с образованием ароматических соединений.

Следует отметить, что образующиеся на катализаторе углеродистые структуры вероятно обладают невысокой степенью поликонденсации, как это отмечается в [16]. Поэтому имеет место полное их удаление в процессе окислительной регенерации катализатора, проводимой нами при  $550^\circ\text{C}$  в потоке воздуха. В этих условиях не происходит разрушение кристаллической структуры цеолита.

Электронно-микроскопически исследованы дисперсность, структура и состояние активных центров  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  катализаторов. Установлено, что на поверхности 1%  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  катализатора присутствуют небольшие скопления плотных частиц с  $D \approx 3,0-7,0$  нм и частицы с  $D \approx 20$ нм, имеющие признаки прямоугольной огранки, идентифицированные как  $\epsilon$ -  $\text{MoO}_3$  и  $\text{MoO}_2$  соответственно. Кроме того, на поверхности катализатора обнаружены скопления с  $D$  от 7,0 до 200,0 нм, в состав которых с  $D \approx 10,0-300,0$  нм.

Дисперсность 3% $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  катализатора значительно выше, чем у содержащего 1% молибдена: на его поверхности преобладают агрегаты с 3,0-5,0 нм, состоящие из более мелких частиц. Имеются также единичные образования с  $D$  – 10,0-5,0 нм. С помощью дифракции электронов установлено, что на поверхности преобладает молибден, окисленный до  $4^x$ -валентного состояния ( $\text{MoO}_2$ ).

Увеличение концентрации молибдена в составе катализатора до 5-7 % приводит к снижению дисперсности структур. Их дисперсность колеблется в пределах 30,0-50,0 нм. В состав этих структур входят  $\text{MoO}_3$ ,  $\text{MoO}_{2,5}(\text{OH})_{0,5}$ .и  $\text{Mo}(\text{Si},\text{Al})_2$ ,  $\text{MoSi}_2$ ,  $\text{Mo}_5\text{Si}_4$ ,  $\text{Mo}_3\text{Si}$ ,  $\text{Al}_{0,30}\text{MoO}_3$ , присутствие которых указывает на внедрение молибдена в кристаллическую структуру цеолита.

Таким образом, можно предположить, что одним из факторов, определяющих активность катализатора неокислительной конверсии метана, является дисперсность структур на его поверхности. Как следует из сопоставления экспериментальных данных, полученных при исследовании каталитических свойств  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  – катализатора, с результатами электронной микроскопии, наиболее активны системы с преобладающим размером структур  $\leq 5,0$  нм.

Изучено влияние скорости подачи метана на процесс его неокислительной конверсии (таблица 3). При температуре  $750^\circ\text{C}$  и  $W=100\text{час}^{-1}$ , индукционный период длится  $\sim 90$  мин: конверсия  $\text{CH}_4=20,2\%$ , в катализате появляется  $1,4\%$  бензола. По истечении 150 мин от начала реакции конверсия метана несколько снижается ( $19,6\%$ ) и далее не меняется:  $\tau=180$  мин,  $W=100\text{час}^{-1}$  и  $t=750^\circ\text{C}$  образуется бензол ( $17,2\%$ ) и в следовых количествах толуол и ксилол.

Таблица 3 –Влияние объемной скорости подачи сырья на процесс неокислительной конверсия метана на  $3\% \text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  – катализаторе

Температура, $^\circ\text{C}$	$\tau$ , мин	Конверсия метана, %	Состав катализата,%			
			метан	бензол	толуол	Ксилол
$W=100 \text{ час}^{-1}$						
750	90	20,2	98,6	1,4		
	120	20,2	97,7	2,3		
	150	19,6	93,7	6,3		
	180	19,8	82,8	17,2	сл	сл
800	30	25,1	96,5	3,5	сл	сл
	80	18,6	87,6	12,4	сл	сл
	120	17,0	70,1	29,9	сл	сл
	180	12,7	68,7	31,3	сл	сл
$W=200 \text{ час}^{-1}$						
750	60	21,8	98,5	1,5		
	90	20,9	89,9	10,1		
	120	17,7	79,3	20,7		
	150	29,8	70,1	28,9	1,0	

	180	15,7	63,0	36,1	0,9	
	210	15,2	60,4	37,9	1,7	
800	60	16,8	88,8	11,2		
	90	16,9	63,3	36,1	0,6	
	120	13,7	59,1	39,9	1,0	
	150	12,5	60,5	35,1	3,2	0,6
	190	12,9	56,3	35,6	3,3	4,8
$W=300 \text{ час}^{-1}$						
750	30	10,4	97,3	0,6	сл	2,1
	90	5,4	75,3	17,8	6,9	сл
	120	5,4	61,0	37,5	1,5	сл
	180	5,7	82,8	44,3	1,9	сл
$W=400 \text{ час}^{-1}$						
750	30	18,1	99,9	сл		сл
	90	7,3	96,1	3,9	сл	сл
	120	4,3	65,3	33,8	0,9	сл
	180	3,3	58,8	35,5	5,7	сл

При  $t=800^{\circ}\text{C}$  и  $W=100 \text{ час}^{-1}$  при равной продолжительности процесса ( $\tau=180$  мин) конверсия метана 12,7%, количество бензола в катализате – 31,3%.

Повышение скорости подачи сырья до  $200 \text{ ч}^{-1}$  при  $t=750^{\circ}\text{C}$  и  $\tau=180$  мин несколько снижает степень конверсии метана до 15,7%, концентрацию основного продукта – до 36,1%. Аналогичная закономерность наблюдается при  $t=800^{\circ}\text{C}$  и  $W=200 \text{ час}^{-1}$ .

Увеличение скорости подачи метана до 300 и  $400 \text{ ч}^{-1}$  резко снижает его конверсию при неокислительной переработке на 3%  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3$  – катализаторе, например, при  $\tau=180$  мин и  $750^{\circ}\text{C}$  до 5,7 и 3,3% соответственно. Согласно [13] с увеличением скорости подачи сырья, т.е. при снижении времени контакта метана с поверхностью, образование углеродистых отложений происходит достаточно быстро. При этом образуются менее однородные и более конденсированные углеродные структуры, блокирующие активным центром катализатора. В связи с этим процессе неокислительной конверсии метана предпочтительно вести при относительно невысоких объемных скоростях –  $100\text{-}200 \text{ ч}^{-1}$

## ЛИТЕРАТУРА

1 Lunsford J. H. Catalytic conversion of methane to more useful chemicals and fuels: a challenge for the 21st century // *Catalysis Today* 2000. V. 63 / P. 165–174;

2 Skutil J, Taniowski M. Some technological aspects of methane aromatization (direct and via oxidative coupling) // *Fuel Processing Technology* 2006. V. 87. P. 511–521;

3 Choudhary T.V., Aksoylu E., and Goodman D.W. Nonoxidative Activation of Methane // *Catalysis reviews*. 2003. Vol. 45, No. 1, pp. 151–203,

4 Госсен Л. П., Величкина Л. М. Экологические проблемы использования нефтегазовых запасов и получения высококачественных нефтепродуктов// *Нефтехимия*. 2012. Т.52. №2. С.154-158 ]

5 Миркин Л.И. Рентгеноструктурный анализ.–М.: Наука, 1976.– 326с.

6 Лукьянович В.М. Электронная микроскопия в физико-химических исследованиях. – М.: Наука, 1960. –290 с.

7 Шиммель Г. Методика электронной микроскопии.–М.: Мир, 1972. –229 с.

8 Пилянкевич А.Н. Просвечивающая электронная микроскопия. Киев.: Наукова думка. 1975. 219с.

9 Исмагилов З. Р., Матус Б. В., Керженцев М. А., Цикоза Л. Т., Исмагилов И.З., Досумов К. Д., Мустафин А. Г. Конверсия метана в ценные продукты в присутствии наноструктурированных Mo/ZSM-5- катализаторов.// *Нефтехимия*. 2011.Т.51. № 3. С. 186-198.

10 Wang, D.J.; Lunsford, J.H.; Rosynek, M.P. Characterization of a Mo/ZSM-5 catalyst for the conversion of methane to benzene. *J. Catal.* 1997, 169, 347–358.

11 Chen, L.Y.; Lin, L.W.; Xu, Z.S.; Li, X.S.; Zhang, T. Dehydrooligomerization of methane to ethylene and aromatics over molybdenum/HZSM-5 catalyst. *J. Catal.* 1995, 157, 190–200.

12 Jiang, H.; Wang, L.S.; Cui, W.; Xu, Y.D. Study on the induction period of methane aromatization over Mo/HZSM-5: partial reduction of Mo species and formation of carbonaceous deposit. *Catal. Lett.* 1999, 57, 95–102.

13 Weckhuysen B.V., Dingjun Wang, Rosynek M.P., and Lunsford J.H. Catalytic Conversion of Methane into Aromatic Hydrocarbons over Iron Oxide Loaded ZSM-5 Zeolites // *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* 1997. V. 36, №. 2. P.

14 [Vosmerikov A. V.](#), [Zaikovskii V. I.](#), [Korobitsyna L. L.](#), [Kozlov V. V.](#), [Arbuzova N. V.](#), [Zhuravkov S. P.](#) Methane conversion into aromatic hydrocarbons over Ag-Mo/ZSM-5 catalysts // [Kinetics and Catalysis](#) 2011, V. 52, [№ 3](#), P. 427-433

15 Shepelev S.S., Ione K.G. Catalytic properties of zeolites with various structures and chemical compositions in the preparation of aromatic hydrocarbons from methane // *Reaction kinetics and catalysis letters*. – 1983. – V. 23, № 3-4. – p. 319-322.

16. Восмери́ков А.В., Ечевский Г.В., Короби́цына Л.Л., Барба́шин Я.Е., Арбу́зова Н. В., Кодене́в Е. Г., Журавко́в С. П. Дезактивация Мо-содержащих цеолитов в процессе неокислительной конверсии метана // Кинетика и катализ. 2005. Т.46. №5. С.769-772.

17. Шети́ан Лю, Линше́нг Ванг, Рюнти́ро Ониси, Масару Иши́кава Дегидроароматизация метана в бензол и нафталин на бифункциональном катализаторе Мо/HZSM-5 в присутствии добавок СО/СО<sub>2</sub>// Кинетика и катализ. 2000. Т.41. №1. С.148-160.

## REFERENCES

- 1 Lunsford J. H. *Catalysis Today*, **2000**, 63 165-174 .
- 2 Skutil L , Taniewski M. *Fuel Processing Technology*, **2006**, 87,511-521.
- 3 Choudhary T.V., Aksoylu E. And Goodman D.W. *Catalysis reviews*, **2003**, 45,151-203 ,
- 4 Gossen .LP, Velichkina L.M .*Neftehimiya*, **2012**, 52, 154 -158 (in Russ).
- 5 Mirkin L.I. *Rentgenostrukturalnyy analiz*, М . : Nauka , **1976**, 326 (in Russ).
- 6 Lukyanovich V.M .*Electronay microscopy v physio- chemicheskii issledovaniya* -М . Nauka , **1960**, 290 (in Russ).
- 7 Schimmel H. *Methodi mikroskopii*, М . : Mir, **1972**, 229 (in Russ).
- 8 Pilyankevich A.N. *Prosvechivaushaya electronnaya microscopya* . Kiev . Naukova Dumka, **1975**, 219 (in Russ).
- 9 Ismagilov Z R. Matus B.V.,Kerzhentsev M.A. , Tsikoza L.T., Ismagilov I.Z., Dosumov K.D. , Mustafin A.G. *Nefteshimia*, **2011**, 51, 186-198 (in Russ).
- 10 Wang D.J.; Lunsford J.H.; Rosynek M.P. *J. Catal.* **1997** , 169, 347-358 .
- 11 Chen L.Y.; Lin L.W; Xu Z.S; Li X.S.; Zhang T. *J. Catal.* **1995** , 157, 190-200
- 12 Jiang H.; Wang L.S.; Cui W.; Xu Y.D. *Catal. Letters*, **1999** , 57, 95-102 .
- 13 Weckhuysen B.V., Dingjun Wang, Rosynek M.P., *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.*, **1997**, 36 , 2
- 14 Vosmerikov A. V., Zaikovskii V. I., Korobitsyna L. L., Kozlov V. V., Arbuzova N. V., Zhuravkov S. P. *Kinetika i kataliz*, **2011** ,52 , 427-433 (in Russ).
- 15 Shepelev S.S., Ione K.G. *Reaction kinetics and catalysis letters*, **1983**, 23, 319-322 .
- 16 Vosmerikov A.V., Echevsky G.V., Korobitsyna L.L., Barbashin YE, Arbuzov N.V., Kodenev EG , Zhuravkov S.P. *Kinetika i kataliz*, **2005**, 46, 769 -772 (in Russ).

17 Shetian Liu, Wang Linsheng , Ryuntiro Onishi , Masaru Ishikawa . *Kinetics i kataliz*,  
2000, 41, 148 – 160 (in Russ).

## Резюме

*Б. Түктин, Л.Б. Шаповалова, Р.И. Егізбаева, Л.В. Комашко*

(Д.В.Сокольский атындағы Органикалық катализ және электрохимия институты)

### ҚҰРАМЫНДА МО-БАР КАТАЛИЗАТОРЫНДА МЕТАНДЫ АРОМАТТЫ КӨМІРСУТЕКТЕРГЕ ТОТЫҚТЫРМАЙ КОНВЕРСИЯЛАУ

Метан конверсиясының өзгеріске ұшырауына тәжірибе температурасы мен ұзақтығының әсері  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3+\text{ZSM}$  катализатор қатысында тотықтырмай өңдеу процесінде түзілген қосылыстар құрамы зерттелді.

**Тірек сөздері:** метан, ZSM цеолит, катализатор.

## Summary

*Tuktin B., Shapovalova L.B., Egizbatva R.I., Komashko L.V.*

(Institute of Organic Catalysis and Electrochemistry of D.V. Sokolsky)

### NON-OXIDATIVE CONVERSION OF METHANE TO AROMATIC HYDROCARBONS ON MONOMETALLIC MOLYBDENUM CATALYSTS

The influence of temperature and duration of the experience on the non-Oxidizing conversion of methane and the composition of the compounds formed in the process of conversion to a  $\text{Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{ZSM}$  catalysts containing different amounts of molybdenum.

**Keywords:** methane, zeolite ZSM, catalyst.

*Поступила 01.11.2013 г.*