

С. Э. Мамедов (д.х.н., проф.)^а, Н. Ф. Ахмедова (к.х.н., н. с.)^б,
С. Э. Гасанзаде (магистрант), С. Э. Мирзалиева (к.х.н., доц.)^а

ВЛИЯНИЕ ПРИРОДЫ И КОНЦЕНТРАЦИИ МЕТАЛЛОВ (Re, Zr) НА КАТАЛИТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ЦЕОЛИТА ЦВН В ПРЕВРАЩЕНИИ ПРЯМОГОННОЙ БЕНЗИНОВОЙ ФРАКЦИИ

Бакинский государственный университет,

^а кафедра «Физической и коллоидной химии»,

^б научно-исследовательская лаборатория металлокомплексных катализаторов

AZ1148, Республика Азербайджан, г. Баку, ул. З.Халилова, 23; e-mail: n_akhmed@mail.ru_

S. E. Mamedov, N. F. Akhmedova, S. E. Gasanzade, S. E. Mirzalieva

THE INFLUENCE OF THE NATURE AND CONCENTRATION OF METALS (Re, Zr) ON THE CATALYTIC PROPERTIES OF ZEOLITE TsVN IN THE CONVERSION OF STRAIGHT-RUN GASOLINE FRACTION

Baku State University

23, Khalilova Str., AZ1148, Baku, Azerbaijan; e-mail: n_akhmed@mail.ru

Проанализировано превращение прямогонной бензиновой фракции с использованием немодифицированного и модифицированных рением и цирконием цеолитных катализаторов на основе высококремнеземного цеолита ЦВН ($\text{SiO}_2\text{:Al}_2\text{O}_3=40$). На немодифицированном цеолите ЦВН в основном протекают реакции крекинга и ароматизации *n*-парафиновых и нафтеновых углеводородов. Изомеризирующая и ароматизирующая активность цеолитного катализатора значительно зависит от природы и концентрации модифицирующего металла. Модифицирование цеолита ЦВН значительно увеличивает выход жидких продуктов и изменяет состав катализата. Увеличение концентрации рения в ЦВН до 2.0% мас. приводит к возрастанию изомеризирующей и ароматизирующей активности катализатора. При оптимальной температуре (380 °C) содержание изопарафиновых и ароматических углеводородов в катализате возрастает до 39.4 и 17.9 % мас. соответственно. Увеличение концентрации рения до 3.0% мас. в катализаторе способствует возрастанию ароматизирующей активности. Модифицирование катализатора 2%Re-ЦВН цирконием в количестве 0.5–1.5 % мас. существенно увеличивает его изомеризирующую активность. Наиболее высокую активность проявляет биметаллический катализатор 1%Zr–2%Re-ЦВН, на котором содержание изопарафиновых углеводородов в катализате возрастает до 43.1% мас. Биметаллический катализатор позволяет в нестандартных условиях (в отсутствие водорода) получать бензиновую фракцию с высоким со-

The transformation of the straight-run gasoline fraction using unmodified and rhenium- and zirconium-modified zeolite catalysts based on high-silica zeolite TsVN ($\text{SiO}_2\text{:Al}_2\text{O}_3=40$) has been subjected to detailed analysis. The cracking and aromatisation reactions of *n*-paraffin and naphthenic hydrocarbons are primarily facilitated by unmodified zeolite TsVN. The isomerising and aromatising activity of the zeolite catalyst is found to depend significantly on the nature and concentration of the modifying metal. The modification of zeolite TsVN has been observed to result in a notable increase in the yield of liquid products, accompanied by a change in the composition of the catalyst. An increase in the concentration of rhenium in TsVN up to 2.0% wt. has been observed to result in an enhancement of the isomerising and aromatising activity of the catalyst. At the optimal temperature (380 °C), the concentration of isoparaffinic and aromatic hydrocarbons in the catalyst reaches 39.4 and 17.9 % wt., respectively. An increase in rhenium concentration up to 3.0% wt. in the catalyst has been observed to promote an enhancement in aromatising activity. The modification of catalyst 2%Re-TsVN with zirconium in the amount of 0.5–1.5 % wt. has been observed to significantly increase its isomerising activity. The bimetallic catalyst 1%Zr–2%Re-TsVN exhibits the highest activity, with an isoparaffin hydrocarbon content in the catalyst reaching 43.1% wt. The bimetallic catalyst enables the production of a gasoline fraction with a high proportion of isoparaffinic

Дата поступления 20.09.24

держанием изопарафиновых (43.1% мас.) и низким содержанием ароматических (17.3% мас.) углеводородов.

Ключевые слова: ароматизация; ароматические углеводороды; изомеризация; изопарафиновые углеводороды; модифицирование; октановое число; прямогонная бензиновая фракция; рений; цеолит ЦВН; цирконий.

В последние годы особое внимание привлекают новые технологии получения моторных топлив класса Евро-4 и Евро-5 путем превращения низкокачественных бензиновых фракций в присутствии наноструктурированных катализаторов ^{1, 2}.

Для производства моторных топлив повышенной «экологической чистоты», содержащих не более 25.0% об. ароматических углеводородов, необходимо увеличение в них доли изопарафиновых углеводородов, также повышающих октановое число топлива ^{3, 4}.

Для достижения этой цели необходим катализатор, обладающий повышенной молекулярно-ситовой избирательностью и высокой изомеризирующей способностью. Таким требованиям отвечают высококремнеземные цеолиты типа ZSM-5 ⁵⁻⁷. Благодаря своей трехмерной структуре, имеющей наноразмерные поры, они обладают молекулярно-ситовыми и кислотными свойствами и проявляют высокую селективность в реакциях дегидрирования, ароматизации, изомеризации, крекинга и олигомеризации различных классов углеводородов ^{8, 9}.

В отличие от катализаторов риформинга ¹⁰ на катализаторах на основе цеолита ZSM-5 превращение прямогонной бензиновой фракции протекает при низкой температуре (350–430 °C) в нестационарных условиях проведения процесса в отсутствии водорода при атмосферном давлении ^{11, 12}.

В работах ¹²⁻¹⁶ показано, что природа и концентрация модифицирующего металла оказывают значительное влияние на каталитические свойства цеолита ZSM-5 в процессе облагораживания прямогонной бензиновой фракции. Однако катализаторы на основе цеолита ZSM-5, модифицированные La, Fe, Zn, Cu, Ga, а также сочетанием двух модификаторов (Zn–Cu, Zr–Zn, Sn–Bi, Cu–Fe, Zn–B, Fe–P) в превращении прямогонной бензиновой фракции проявляют более высокую ароматизирующую активность.

Октановое число катализата повышается в основном за счет высокого содержания ароматических углеводородов.

В связи с этим, целью работы явился подбор к катализаторам на основе цеолита ЦВН модификаторов, способствующих, в основном, увеличению их изомеризирующей активности в процессе превращения прямогонной бензиновой фракции.

hydrocarbons (43.1% wt.) and a low proportion of aromatic hydrocarbons (17.3% wt.) under non-standard conditions (in the absence of hydrogen).

Key words: aromatic hydrocarbons; aromatization; isomerisation; isoparaffinic hydrocarbons; modification; octane number; rhenium; straight-run gasoline fraction; zeolite TsVN; zirconium.

Материалы и методы исследования

В качестве исходного использовали высококремнеземный цеолит ЦВН со структурой MFI с мольным соотношением $\text{SiO}_2:\text{Al}_2\text{O}_3=40$ (производство ЗАО «Нижегородские сорбенты») с низким содержанием (0.05% мас.) Na_2O . Для получения H-формы исходный цеолит прокаливали при 550 °C в течение 6 ч.

Катализаторы, модифицированные рением (1.0–3.0 % мас.) получали пропиткой НЦВН водным раствором перрената рения (NH_4ReO_4) при 80 °C в течение 6 ч. Биметаллические катализаторы получали пропиткой образца 2%Re-НЦВН раствором оксихлорида циркония ($\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$) в изопропиловом спирте в течение 4 ч. Образцы сушили при температуре 110 °C (4 ч), затем прокаливали на воздухе при температуре 350 и 550 °C соответственно по 4 ч.

Перед проведением опытов образцы подвергали активации воздухом при 500 °C, а затем водородом при 380 °C в течение 2 ч.

Рентгенофазовый анализ катализаторов проводили с помощью порошкового рентгеновского дифрактометра Riqaki CuK_α -излучением ($\lambda = 0.15046$ нм), работающего при 40 кВ и 30 мА. Диапазон сканирования 2θ от 10 до 80 ° с шагом сканирования 0.0167 °.

Каталитические эксперименты проводили в проточной установке идеального вытеснения со стационарным слоем катализатора (5.0 см³, диаметр 1.5 мм) в диапазоне температур 350–430 °C, при объемной скорости подачи сырья 2 ч⁻¹, атмосферном давлении в отсутствие водорода.

В качестве сырья использовали прямогонную бензиновую фракцию следующего углеводородного состава (% мас.): *n*-парафины – 34.7; изопарафины – 29.8; нафтенy – 30.4; ароматические углеводороды – 5.1. Октановое число исходного сырья по исследовательскому методу (ИМ) – 59.

Анализ продуктов превращения прямогонной бензиновой фракции проводили газохроматографическим методом на базе хроматографа Agilent 7890A на капиллярной колонке (100 м × 0.25 мм × 0.5 мкм), заполненной сорбентом DF-PETPO с пламенно-ионизационным детектором.

Октановое число катализата определяли по методике ⁶.

Обсуждение результатов

На рис. 1 представлены рентгенограммы 1% Zr-НЦВН и 1%Zr–2%Re-НЦВН катализаторов. На рентгенограммах наблюдаются пики при $2\theta = 7.96, 8.8, 23.2, 23.3, 24^\circ$, которые характерны для цеолитов с каркасом MFI¹⁷. Это указывает на то, что после модифицирования кристаллическая структура цеолита хорошо сохранилась. На образцах 1%Zr-НЦВН и 1%Zr–2%Re-НЦВН явных пиков в пределах исследуемых углов не обнаружено, что указывает на исключительно однородную дисперсию модификаторов.

В табл. 1 представлены результаты влияния модифицирования цеолита ЦВН рением и цирконием на выход и состав жидких продуктов при превращении прямогонной бензиновой фракции в интервале температур 350–430 °С. Видно, что немодифицированный цеолит НЦВН обладает, в основном, крекирующей и ароматизирующей активностью. На НЦВН с увеличением температуры реакции с 350 до 430 °С наблюдается значительное снижение выхода жидких продуктов (с 70.6 до 60.2 % мас.) и увеличение выхода ароматических углеводородов (с 10.9 до 17.9 % мас.). На этом образце содержание изопарафиновых углеводородов в катализате возрастает всего на 2.4% мас. При 380 °С октановое число катализата по отношению к исходному сырью возрастает с 58 до 72.

Модифицирование цеолита НЦВН рением в количестве 1.0–3.0 % мас. способствует значитель-

ному возрастанию содержания в катализате изопарафиновых и ароматических углеводородов.

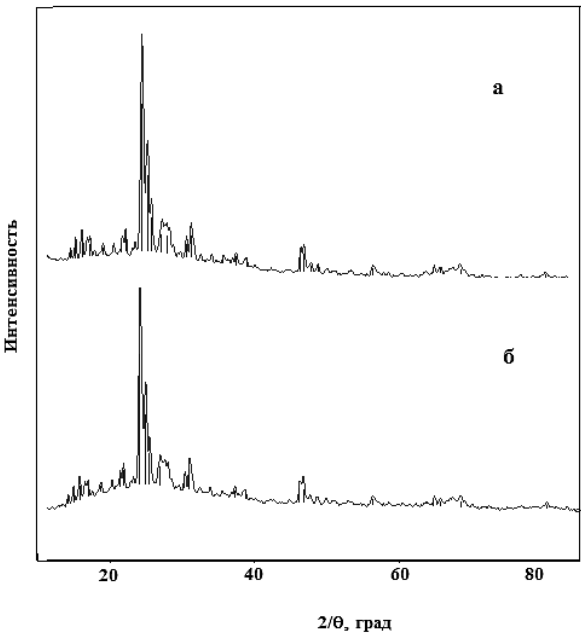


Рис. 1. Рентгенограммы: а – немодифицированного цеолита 1%Zr–НЦВН; б – модифицированного катализатора и 1%Zr–2%Re–НЦВН

Максимальное содержание изопарафиновых углеводородов (39.4% мас.) при 380 °С достигается на образце, содержащем 2.0% мас. рения. Октановое число катализата возрастает до 80.5.

Таблица 1

Влияние модифицирования цеолита ЦВН рением и цирконием на выход и состав жидких продуктов при превращении прямогонной бензиновой фракции

Катализатор	Т, °С	Выход ЖП, % мас.	Углеводородный состав ЖП, % мас.			
			ПРУ+НФУ	Изо-ПРУ	Ол.У.	АРУ
НЦВН	350	70.6	56.8	31.0	1.3	10.9
	380	65.3	52.1	31.9	1.9	14.1
	430	60.2	48.9	29.4	3.8	17.9
1%Re-НЦВН	350	72.7	53.0	33.1	1.1	12.8
	380	70.1	46.3	36.6	1.3	15.8
	430	67.2	42.5	35.7	2.1	19.7
2%Re-НЦВН	350	76.1	46.0	36.3	0.9	16.8
	380	72.4	41.6	39.4	1.1	17.9
	430	69.2	39.1	38.1	1.7	21.1
3%Re-НЦВН	350	75.1	45.8	35.9	0.8	17.6
	380	73.8	41.8	37.8	1.0	19.4
	430	69.4	38.7	36.9	1.6	22.8
0.5%Zr–2%Re-НЦВН	350	76.2	44.7	38.1	0.7	16.5
	380	74.7	42.0	39.7	1.0	17.3
	430	71.2	40.1	37.6	1.5	20.8
1% Zr 2%Re-НЦВН	350	77.6	43.9	39.4	0.6	16.1
	380	76.1	38.9	43.1	0.7	17.3
	430	72.4	38.6	40.3	0.9	20.2
1.5% Zr 2%Re-НЦВН	380	76.6	40.4	41.9	0.6	17.1
	430	72.9	39.4	39.9	0.8	19.9

Примечание: ЖП – жидкие продукты; Пр. У, Нф. У., Ол. У., АРУ – соответственно парафиновые, нафтеновые, олефиновые ароматические углеводороды.

Увеличение концентрации рения катализаторе до 3.0% мас. не способствует возрастанию его изомеризующей активности. На этом образце наблюдается заметное уменьшение содержания изопарафиновых углеводородов. (до 37.8%). По сравнению с немодифицированным цеолитом на всех модифицированных образцах наблюдается возрастание выхода жидких продуктов.

Дополнительное модифицирование Re-содержащего цеолита (2%Re–НЦВН) цирконием в количестве 0.5–1.5 % мас. приводит к значительному возрастанию изомеризующей, но мало влияет на его ароматизирующую активность катализатора.

Наиболее высокую изомеризующую активность проявляет биметаллический катализатор, содержащий 1.0% мас. циркония (1%Zr–2%Re–НЦВН). На этом образце при 380 °С содержание

изопарафиновых углеводородов возрастает до 43.1% мас. Октановое число катализата возрастает до 86.3.

Таким образом, модифицирование цеолита НЦВН изменяет выход и состав катализата. Модифицирование НЦВН рением снижает его крекирующую и активность, увеличивает изомеризующую и ароматизирующую активность. Дополнительное модифицирование Re-содержащего катализатора цирконием, в основном, повышает его изомеризующую активность. Октановое число катализата увеличивается за счет возрастания в катализате изопарафиновых и ароматических углеводородов. Следует отметить, что содержание ароматических углеводородов в катализате не превышает 25.0% мас., что соответствует нормам, предъявляемым к экологически чистым бензинам.

Литература

1. Peron D.V., Zholobenko V.L., de la Rocha M.R., de Souza M.O., Feris L.A., Marcilio N.R., Ordonsky V.V., Khodakov A.Y. Nickel-Zeolite Composite Catalysts with Metal Nanoparticles Selectively Encapsulated in the Zeolite micropores // *Journal of Materials Science*. – 2019. – V. 54(7). – Pp.5399-5411.
2. Величина Л.М., Барбашин Я.Е., Восмерилов А.В. Влияние рения на физико-химические свойства цеолита типа MFI и динамику его дезактивации в процессе облагораживания прямогонной бензиновой фракции нефти // *Химия в интересах устойчивого развития*. – 2020. – №3. – С.229-235.
3. Степанов В.Г., Ионе К.Г. Производство моторных топлив из прямогонных фракций нефтей и газовых конденсатов с применением процесса «Цеоформинг» // *Химия в интересах устойчивого развития*. – 2005. – №6. – С.809-822.
4. Татаркина А.И., Хомяков И.С., Волгина Т.Н. Превращение прямогонных бензинов газового конденсата на модифицированных цеолитных катализаторах // *Инновации в науке*. – 2014. – №29. – С.53-59.
5. Величина Л.М., Восмерилов А.В., Восмерикова Л.Н., Канашевич Д.А. Влияние структурного типа цеолита на его изомеризующую активность в процессе превращения *n*-алканов // *Нефтепереработка и нефтехимия*. – 2016. – №8. – С.29-36.
6. Мамедов С.Э., Ахмедова Н.Ф., Мирзалиева С.Э., Мамедова А.З., Ахмедов Э.И., Ширинова С.М. Каталитические свойства биметаллических Zr–Zn-содержащих ультраилы в превращении прямогонной бензиновой фракции // *Баш. хим. ж.* – 2019. – Т.26, №1. – С.54-58.
7. Ерофеев В.И., Хомяков И.С., Егорова Л. А. Получение высокооктановых бензинов из прямогонных бензинов на модифицированных цеолитах // *Теоретические основы химической технологии*. – 2014. – Т.48, №1. – С.77-82.
8. Baerlocher Ch., McCusker L.B., Olson D.H. Atlas of Zeolite Framework Types. – Elsevier Science, 2007. – 404 p.
9. Завалинская И.С., Маликов И.В., Ясьян Ю.П. Превращения прямогонной бензиновой фракции на комбинированных цеолитсодержащих катализаторах

References

1. Peron D.V., Zholobenko V.L., de la Rocha M.R., de Souza M.O., Feris L.A., Marcilio N.R., Ordonsky V.V., Khodakov A.Y. [Nickel-zeolite composite catalysts with metal nanoparticles selectively encapsulated in the zeolite micropores]. *Journal of materials science*, 2019, no.54(7), pp.5399-5411.
2. Velichkina L.M., Barabashin Ya.E., Vosmerikov A.V. *Vliyaniye reniya na fiziko-khimicheskiye svoystva tseolita tipa MFI i dinamiku ego dezaktivatsii v protsesse oblagorashivaniya pryamogonnoi benzinovoi fraktsii nefi* [Influence of rhenium on physicochemical properties of zeolite of MFI type and dynamics of its deactivation in the process of refining of straight-run petrol fraction of oil]. *Khimiya v interesakh ustoychivogo razvitiya* [Chemistry of Sustainable Development], 2020, no.3, pp.229-235.
3. Stepanov V. G., Ione K.G. *Proizvodstvo motornykh topliv iz pryamogonnykh fraktsiy neftei i gazovykh kondensatov s primeneniem protsesssa «Tseoformining»* [Production of motor fuels from straight-run oil fractions and gas condensates using the Zeoforming process]. *Khimiya v interesakh ustoychivogo razvitiya* [Chemistry of Sustainable Development], 2005, no.6, pp. 809-822.
4. Tatarkina A. I. I., Khomyakov I. S., Volgina T. N. *Prevrashchenie pryamogonnykh benzinov gazovogo kondensata na modifitsirovannykh tseolitnykh katalizatorakh* [Conversion of straight-run gasoline gas condensate on modified zeolite catalysts]. *Innovatsii v nauke* [Innovations in Science], 2014, no.29, pp.53-59.
5. Velichkina L.M., Vosmerikov A.V., Vosmerikova L.N., Kanashevich D.A. *Vliyaniye strukturnogo tipa tseolita na ego izomerizuyushuyu aktivnost v protsesse prevrascheniya n-alkanov* [The influence of the structural type of zeolite on its isomerizing activity in the process of transformation of *n*-alkanes]. *Neftepererabotka i neftekhiya* [Oil refining and petrochemistry], 2016, no.8. pp.29-36.
6. Mamedov S.E., Akhmedova N.F., Mirzalieva S.E., Mamedova A.Z., Akhmedov E.I., Shirinova S.M. *Kataliticheskiye svoystva bimetallicheskikh Zr–Zn sodershatshchikh ultrasilov v prevratschenii pryamogonnoy benzinovoy fraktsii* [Catalytic properties of bimetallic Zr–Zn-containing ultrasil in the transformation of straight-run gasoline fraction]. *Bashkirskii khimicheskii zhurnal* [Bashkir Chemical Journal], 2019. vol.26, no.1, pp.54-58.

- рах // Химия и технология топлив и масел. – 2015. – №2. – С.14-17.
10. Muktar B.U., Kolesnikov I.M., Kolesnikov S.I. Reforming of gasoline fraction at a commercial unit // Химия и технология топлив и масел. – 2002. – №5(515). – С.10-11.
11. Ерофеев В.И., Хомяков И.С. Конверсия прямогонных бензинов в высокооктановые бензины на цеолитах типа ZSM-5, модифицированных гетерополисиодинениями Мо // Успехи современного естествознания. – 2015. – №1. – С.1364-1368.
12. Морозов А.Ю., Каратун О.Н. Облагораживание прямогонной бензиновой фракции 75–100 °С Астраханского газового конденсата на пентасилсодержащих катализаторах // Грозненский естественнонаучный бюллетень. – 2018. – Т.3, №6(14). – С.95-101.
13. Хомяков И.С., Боженкова Г.С. Исследование кислотных и каталитических свойств цеолитов типа MFI, модифицированных оксидом лантана, в процессе получения высокооктановых бензинов // Международный научно-исследовательский журнал. – 2017. – №2(56). – С.107-109.
14. Хомяков И.С., Горшков А.М., Герасина Т.А. Процесс получения высокооктановых компонентов моторных топлив из прямогонных бензинов на модифицированных цеолитных катализаторах // Химия и технология топлив и масел. – 2017. – №4. – С.8-11.
15. Мамедов С.Э., Ахмедова Х.В., Ахмедова Н.Ф., Дадашева С.С., Ахмедов Э.И. Превращения прямогонной бензиновой фракции на высококремнеземном цеолите, модифицированном галлием и цирконием // Химия и технология топлив и масел. – 2016. – №3. – С.28-30.
16. Мамедов С.Э., Ахмедова Н.Ф., Мирзалиева С.Э., Мамедова А.З., Ахмедов Э.И. Исследование свойств биметаллических Cu–Zr-содержащих пентасилов в облагораживании прямогонной бензиновой фракции // Нефтепереработка и нефтехимия. – 2019. – №4. – С.8-10.
17. Tian HF, Yang X, Tian HZ, Zha F, Guo XJ et al. Realization of rapid synthesis of H-ZSM-5 zeolite by seed-assisted method for aromatization reactions of methanol or methane // Canadian Journal of Chemistry. – 2021. – V.99(11). – Pp.874-880.
7. Erofeev V.I., Khomyakov I.S., Egorova L.A. *Poluchenie vysokooktanovykh benzinov iz pryamogonnykh benzinov na modifitsirovannykh tseolitakh* [Production of high-octane gasolines from straight-run gasolines on modified zeolites]. *Teoreticheskie osnovy khimicheskoy tekhnologii* [Theoretical foundations of chemical technology], 2014, vol.48, no.1, pp.77-82.
8. Baerlocher Ch., McCusker L.B., Olson D.H. Atlas of Zeolite Framework Types. Elsevier Science, 2007, 404 p.
9. Zavalinskaya I.S., Malikov I.V., Yasyan Y.P. [Conversion of Straight-Run Gasoline Fraction on Combined Zeolite-Containing Catalysts]. *Chemistry and technology of fuels and oils*, 2015, vol.51, no.2, pp.154-159.
10. Ul'd Muktar B., Kolesnikov I.M., Kolesnikov S.I. [Characteristics of reforming of the naphtha cut in an industrial plant]. *Chemistry and Technology of Fuels and Oils*, 2002, vol.38, №5, pp.293-295.
11. Erofeev V. I., Khomyakov I. S. *Konversiya pryamogonnykh benzinov v vysokooktanovye benziny na tseolitakh tipa ZSM-5, modifitsirovannykh geteropolisoedineniyami Mo* [Conversion of straight-run gasoline into high-octane gasoline on zeolites of ZSM-5 type modified with Mo heteropoly compounds]. *Uspekhi sovremennogo estestvoznaniya* [Successes of Modern Natural Science], 2015, no.1, pp.1364-1368.
12. Morozov A.Y., Karatun O.N. *Oblagorazhivanie pryamogonnoy benzinovoy fraktsii 75–100 °C Astrachanskogo gazovogo kondensata na pentasilsoedershaschikh katalizatorakh* [Dehydration of straight-run gasoline fraction of 75–100 °C Astrakhan gas condensate on pentasil-containing catalysts]. *Groznyy estestvenno-nauchnyy bulletin* [Grozny Natural Science Bulletin], 2018, vol.3, no.6(14), pp.95-101.
13. Khomyakov I.S., Bozhenkova G.S. *Issledovanie kislotnykh i kataliticheskikh svoystv tseolitov tipa MFI, modifitsirovannykh oksidom lantana, v protsesse polucheniya vykooktanovykh benzinov* [Study of acid and catalytic properties of MFI type zeolites modified with lanthanum oxide in the process of obtaining high-octane gasoline]. *Internatsionalnyi nauchno-issledovatel'skiy zhurnal* [International Scientific Research Journal], 2017, no.2(56), pp.107-109.
14. Khomyakov I. S., Gorshkov A. M., Gerasina T. A. [Process of Producing High-Octane Motor Fuel Components from Straight-Run Gasolines on Modified Zeolite Catalysts]. *Chemistry and technology of fuels and oils*, 2017, vol.53, no.4, pp.464-469.
15. Mamedov S.E., Akhmedova Ch.V., Akhmedova N.F., Dadasheva S.S., Akhmedov E.I. [Transformation of Straight-Run Gasoline Fraction on High-Silica Zeolite Modified by Gallium and Zirconium]. *Chemistry and Technology of Fuels and Oils*, 2016, vol.52, no.3, pp.280-284.
16. Mamedov S.E., Akhmedova N.F., Mirzaliyeva S.E., Mamedova A.Z., Akhmedov E.I. *Issledovaniye svoystv bimetallicheskh Cu–Zn-soderzhaschikh pentasilov v oblagorazhivani pryamogonnoy benzinovoy fraktsii* [Study of the properties of bimetallic Cu–Zr-containing pentasils in the refining of straight-run gasoline fraction]. *Neftepererabotka i neftekhimiya* [Oil refining and petrochemistry], 2019, no.4, pp.8-10.
17. Tian HF, Yang X, Tian HZ, Zha F, Guo XJ et al. [Realization of rapid synthesis of H-ZSM-5 zeolite by seed-assisted method for aromatization reactions of methanol or methane]. *Canadian Journal of Chemistry*, 2021, no.99(11), pp.874-880.