

Матричная конверсия метана: закономерности, преимущества и практические перспективы

А.В. Никитин^{1,2*}, А.В. Озерский¹, И.В. Седов², В.И. Савченко², В.С. Арутюнов^{1,2}

¹Федеральный исследовательский центр химической физики им. Н.Н. Семенова РАН,
ул. Косыгина, 4, Москва, Россия

²Федеральный исследовательский центр проблем химической физики и медицинской химии РАН,
пр. академика Н.Н. Семенова, 1, Черноголовка, Россия

ARTICLE INFO

Получено
17.05.2026

Получено в исправленном
виде
14.06.2026

Принято
17.06.2026

Ключевые слова:

природный газ;
матричная конверсия;
парциальное окисление;
синтез-газ

АННОТАЦИЯ

Значительные запасы нетрадиционного природного газа в земной коре позволяют рассматривать его в долгосрочной перспективе не только как ключевой источник энергии, но и как экономически привлекательное сырье для производства широкого спектра базовых нефтехимических продуктов. Вместе с тем развитие газохимии в значительной степени ограничивается высокой технологической сложностью и энергоемкостью многостадийных процессов, необходимых для преобразования метана в термодинамически менее устойчивые соединения.

В качестве одного из перспективных направлений преодоления указанных ограничений рассматривается технология автотермической матричной конверсии природного газа в синтез-газ и водород, основанная на внутренней рекуперации тепла продуктов реакции и реализуемая в режиме поверхностного горения. Такой подход позволяет повысить тепловую эффективность процесса и упростить его аппаратное оформление. Предлагаемая технология реализована в нескольких демонстрационных установках производительностью до 10 нм³/ч по природному газу. Показано, что матричная конверсия эффективно протекает при давлениях до 2,5 МПа при использовании в качестве окислителя кислорода, воздуха, а также обогащенного кислородом воздуха.

В настоящей работе рассмотрены основные физико-химические принципы матричной конверсии метана воздухом, обобщены достигнутые на сегодняшний день результаты и проанализированы наиболее перспективные направления ее практического применения.

1. Введение

За последние десятилетия возобновляемые источники энергии продемонстрировали устойчивый рост и стали важным элементом глобальной энергетической системы. Тем не менее, даже при ускоренных темпах их внедрения большинство прогнозов указывает на сохранение существенной зависимости мировой экономики от ископаемых источников энергии в средне- и долгосрочной перспективе. В этих условиях природный газ благодаря сочетанию значительных разведанных и «нетрадиционных» запасов, относительно низкой углеродоемкости и развитой инфраструктуры рассматривается как ключевой ресурс переходного периода к низкоуглеродной энергетике [1].

Наряду с традиционным использованием в энергетике, природный газ приобретает все большее значение как универсальное сырье для химической промышленности. Однако прямое превращение метана в продукты с более высокой добавленной стоимостью остается сложной задачей вследствие высокой термодинамической устойчивости молекулы CH₄. В связи с этим в современной газохимии практически все крупнотоннажные процессы основываются на промежуточной стадии получения синтез-газа (смеси CO и H₂) [2, 3], которая служит универсальной платформой для последующего синтеза метанола, жидких углеводородов и других продуктов.

Ключевой проблемой является то, что стадия конверсии метана в синтез-газ остается наиболее

*Corresponding author: A.V. Nikitin; E-mail address: ni_kit_in@rambler.ru

капитало- и энергоемкой частью технологической цепочки: на нее может приходиться до 60-70% совокупных затрат. Это приводит к существенно более высоким удельным капитальным вложениям по сравнению с нефтехимическими процессами и ограничивает экономическую эффективность газохимических технологий, особенно в условиях распределенных и малотоннажных источников газа. Таким образом, разработка принципиально новых подходов к интенсификации и упрощению процессов получения синтез-газа представляет собой одну из ключевых задач современной химической технологии.

В последние годы предложен широкий спектр решений, направленных на преодоление указанных ограничений. К ним относятся кислородо-проводящие мембраны (ITM), обеспечивающие комбинацию стадий разделения воздуха и реакции [4, 5]; микроканальные реакторы, позволяющие радикально интенсифицировать тепло- и массообмен за счет уменьшения характерных размеров [6]; процессы кратковременного катализа с миллисекундными временами контакта [7, 8]; режимы фильтрационного горения в пористых средах, обеспечивающие эффективную рекуперацию тепла [9, 10]; а также энергохимические подходы, основанные на интеграции с энергетическими установками различного типа [11-14]. Несмотря на значительный научный и инженерный прогресс, перечисленные направления в большинстве случаев сталкиваются с ограничениями, связанными с масштабированием, устойчивостью режимов и сложностью аппаратного оформления, что сдерживает их широкое промышленное внедрение.

Даже наиболее развитые технологии, такие как автотермический риформинг [15] и комбинированные процессы с участием CO_2 (например, три-риформинг [16]), не в полной мере решают проблему одновременного обеспечения высокой эффективности, тепловой устойчивости и технологической компактности. В частности, остается нерешенной фундаментальная задача стабилизации экзотермических реакций парциального окисления метана при высоких тепловых потоках без формирования локальных перегревов, деградации катализаторов и образования углеродных отложений.

В этом контексте особый интерес представляет использование матричных конверторов, в которых реализуется ламинарный фронт пламени, локализованный над поверхностью газопроницаемой матрицы, за счет которой происходит ин-

тенсивный внутренний теплообмен между продуктами конверсии и исходным газовым сырьем.

В отличие от ранее предложенных решений матричная конверсия позволяет одновременно обеспечить автотермичность процесса, подавление локальных перегревов в реакционной зоне и высокую селективность по целевым компонентам синтез-газа.

В настоящей работе представлены результаты систематического исследования закономерностей протекания матричной конверсии метана в синтез-газ. Предложенный подход переработки природного газа рассматривается как основа для создания компактных и энергоэффективных реакторных систем нового поколения, ориентированных на переработку как традиционных, так и распределенных источников природного газа

2. Закономерности протекания матричной конверсии природного газа

Матричная конверсия представляет собой парциальное газофазное окисление углеводородов, реализуемое в условиях внутренней рекуперации тепла от продуктов реакции в поток исходных реагентов непосредственно в реакционной зоне [17]. В отличие от традиционных реакторных схем данный подход основан на управляемом пространственном сопряжении процессов тепловыделения и теплопереноса и относится к классу сверхадиабатических режимов горения, при которых температура в зоне реакции может превышать адиабатическую температуру смеси заданного состава. К числу близких по физической природе процессов относится фильтрационное горение, однако в матричной конверсии реализуется принципиально иной механизм стабилизации реакционной зоны и теплового режима [10].

Ключевой особенностью рассматриваемого подхода является реализация процесса в режиме беспламенного поверхностного горения, при котором зона окисления стабилизируется вблизи поверхности проницаемой матрицы (на расстоянии порядка 15-20 мм). В качестве матрицы используются жаропрочные пористые структуры (перфорированные керамические материалы, пенометаллы, волокнистые металлические среды, а также спрессованные проволоочные системы на основе нихрома или фехраля), обладающие высокой теплопроводностью и развитой поверхностью теплообмена.

В этих условиях реализуется интенсивный двусторонний теплообмен между зоной реак-

ции и твердой матрицей, включающий как конвективную, так и радиационную составляющие. В результате формируется характерное перераспределение температурного поля: продукты реакции частично охлаждаются (на 400–500 °С), тогда как матрица аккумулирует и перераспределяет тепловую энергию, нагреваясь до температур порядка 900–1000 °С. Это обеспечивает эффективный предварительный нагрев свежей реакционной смеси непосредственно перед ее поступлением в зону окисления.

Принципиальная новизна предлагаемого подхода заключается в том, что внутренняя рекуперация тепла и распределенный характер протекания реакции позволяют сформировать квазиизотермические условия в реакционном объеме при сохранении высоких локальных скоростей реакции. В отличие от традиционных процессов парциального окисления, где интенсификация сопровождается усилением тепловых неустойчивостей, в матричном конверторе обеспечивается одновременное повышение интенсивности процесса и его термической устойчивости. Схема матричного блока представлена на рис. 1.

Рекуперация тепла продуктов конверсии позволяет устойчиво конвертировать очень богатые смеси метана с атмосферным воздухом, воздухом, обогащенным кислородом, и техническим кислородом при очень низких значениях коэффициента избытка окислителя $\alpha = [\text{O}_2]/2[\text{CH}_4]$, вплоть до значений $\alpha = 0,30$. Однако наиболее полная конверсия метана и максимальная концентрация компонентов синтез-газа H_2 и CO достигаются при значениях $\alpha = 0,34$ – $0,36$, которые являются оптимальными для данного процесса.

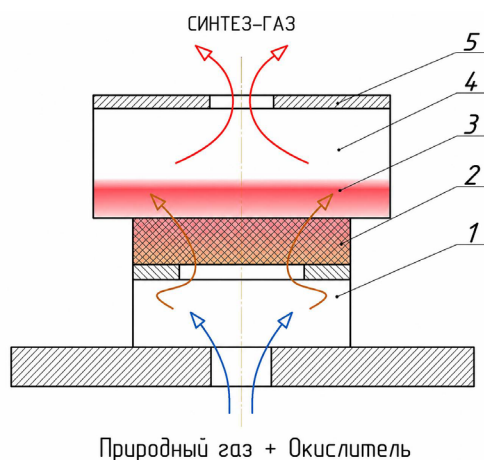


Рис. 1. Схема матричного блока: 1 – камера подогрева исходной смеси; 2 – газопроницаемая матрица; 3 – фронт пламени; 4 – камера сгорания; 5 – радиационный экран с апертурой в центре.

2.1. Влияние коэффициента избытка окислителя (α) на состав продуктов

Влияние коэффициента избытка окислителя (α) на параметры матричной конверсии метана исследовано в диапазоне 0,30–0,40 при практически одинаковой суммарной подаче метановоздушной смеси. Показано, что изменение α оказывает существенное влияние на температурный режим и состав продуктов реакции (рис. 2).

Максимальная температура рабочей поверхности матрицы наблюдается при $\alpha = 0,36$ – $0,38$. При $\alpha \sim 0,34$ достигается наибольшая концентрация водорода. Снижение α до 0,32 приводит к уменьшению температуры матрицы и росту концентрации непрореагировавшего метана, что свидетельствует о снижении интенсивности радикального окисления.

При увеличении α до 0,40 температура матрицы также снижается, что сопровождается уменьшением концентраций H_2 и CO и ростом остаточного метана. В рассматриваемых условиях увеличение α означает пропорциональное повышение подачи как кислорода, так и азота. Поскольку азот не участвует в реакции, его основная роль сводится к увеличению суммарной теплоемкости газовой смеси. Рост доли инертного компонента приводит к:

- снижению адиабатической температуры реакции;
- увеличению тепловых потерь с уходящим продуктовым потоком;
- ослаблению теплового самоускорения процесса.

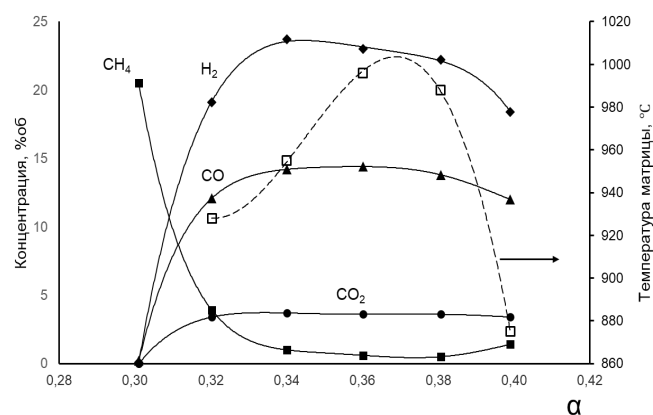
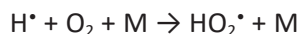


Рис. 2. Зависимость концентрации основных компонентов синтез-газа и температуры рабочей поверхности матрицы от начального соотношения метан/воздух (α) при матричной конверсии метана воздухом.

Дополнительным фактором является изменение структуры цепного процесса в условиях повышенного содержания кислорода. Газофазное окисление метана протекает по разветвленному радикальному механизму. В области оптимальных температур основную роль играют стадии разветвления, обеспечивающие поддержание высокой концентрации активных частиц. При увеличении α возрастает вероятность реакции:



Образующиеся пероксидные радикалы в рассматриваемых условиях характеризуются меньшей реакционной способностью по сравнению с атомами водорода и гидроксильными радикалами. Это приводит к частичной стабилизации цепей и снижению эффективной скорости разветвления. Из-за значительной разницы в активности атома водорода и гидропероксидного радикала реакция является стадией обрыва цепи.

Следовательно, при $\alpha = 0,40$ одновременно реализуются два фактора, уменьшающих суммарную скорость окисления:

1. Снижение температуры вследствие роста теплоемкости смеси;
2. Изменение радикального баланса в сторону увеличения доли менее активных пероксидных частиц.

Совокупность указанных факторов приводит к существованию максимума конверсии при некотором промежуточном значении α . При меньших α система приближается к границе автотермичности и испытывает дефицит тепловыделения. При чрезмерном увеличении α возрастает тепловой балласт и ослабляется цепное разветвление.

Таким образом, зависимость степени превращения метана от коэффициента избытка окислителя носит экстремальный характер, что является типичной особенностью автотермических газофазных процессов.

2.2. Влияние скорости подачи реагентов на состав синтез-газа

При увеличении расхода исходной газовой смеси при фиксированном коэффициенте избытка окислителя (α) состав образующегося синтез-газа в широком диапазоне нагрузок остается практически неизменным. Однако при достижении высоких значений расхода наблюдается потеря устойчивости процесса, сопровождающаяся срывом пламени. На рис. 3 представлена зависимость концентраций основных компонентов синтез-газа от расхода метана при постоянном значении α .

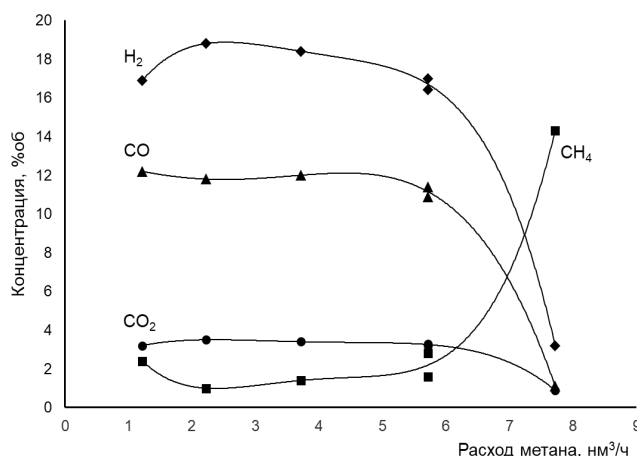


Рис. 3. Зависимость концентрации основных компонентов синтез-газа от расхода метана при матричной конверсии метана воздухом. Давление – атмосферное, площадь рабочей поверхности матрицы – примерно 63 см².

В серии экспериментов при коэффициенте избытка окислителя $\alpha = 0,36$ исследовано влияние расхода метановоздушной смеси на состав продуктов реакции. Установлено, что в диапазоне расходов метана от 1 до 6 нм³/ч состав газовой фазы остается устойчивым и практически не изменяется, что указывает на реализацию стационарного режима парциального окисления. При этом температурное состояние матрицы изменяется плавно и соответствует устойчивому автотермическому режиму.

В указанном диапазоне наблюдаются высокие и стабильные концентрации H₂ и CO при незначительном остаточном содержании метана, что свидетельствует о глубоком протекании цепного окислительного процесса. Таким образом, вплоть до расхода метана порядка 6 нм³/ч реализуется устойчивый режим матричной конверсии с эффективным образованием синтез-газа.

При дальнейшем увеличении расхода метана (свыше 6 нм³/ч) наблюдается резкое снижение концентраций H₂ и CO, сопровождающееся ростом содержания непрореагировавшего метана. Переход носит скачкообразный характер и указывает на качественное изменение режима протекания процесса.

При неизменном значении коэффициента избытка окислителя определяющим фактором устойчивости становится кинетика химического превращения, а не стехиометрия смеси. Увеличение расхода приводит к сокращению времени пребывания реагирующей смеси в реакционной зоне. При достижении критической нагрузки это время становится сопоставимым с характерным

временем развития цепного механизма окисления. В результате концентрация активных радикалов не достигает уровня, необходимого для поддержания устойчивого автотермического режима, что приводит к срыву стационарного состояния.

Таким образом, экспериментально установлено существование критического значения расхода, превышение которого вызывает кинетически обусловленный срыв цепного режима даже при неизменном составе исходной смеси. Полученные результаты показывают, что устойчивость процесса матричной конверсии метана определяется совокупностью взаимосвязанных факторов:

- стехиометрическим соотношением реагентов;
- тепловым режимом в объеме матрицы;
- временем пребывания реакционной смеси в зоне реакции.

Нарушение баланса между указанными параметрами приводит к переходу системы в иной, нестационарный режим с резким ухудшением характеристик процесса.

2.3. Механизм матричной конверсии углеводородных газов

Процесс конверсии углеводородных газов в матричном реакторе не ограничивается стадией быстрого парциального окисления, протекающей вблизи поверхности матрицы, и продолжается в послепламенной зоне (ППЗ) реактора. Согласно результатам кинетического моделирования, формирование конечного состава продуктов происходит в ходе последовательного протекания ряда взаимосвязанных стадий (рис. 4):

1. Быстрая стадия парциального окисления углеводородов вблизи поверхности матрицы (зона пламени);

2. Стадия бескислородного термического пиролиза остаточных углеводородов с преимущественным образованием ацетилена;

3. Стадия паровой и углекислотной конверсии ацетилена, сопровождающаяся существенным увеличением выхода H_2 и CO и установлением квазистационарного состояния, близкого к равновесию реакции водяного газа (WGSR) (H_2 , H_2O , CO , CO_2);

4. Последующий выход системы на термодинамически равновесный состав продуктов.

Следует отметить, что указанные стадии не являются строго разделенными во времени и пространстве: они частично перекрываются и соответствующие элементарные процессы протекают в смежных областях реакционного объема. При матричном парциальном окислении углеводородов практически полное потребление кислорода, подаваемого в недостатке, происходит в узкой зоне пламени. Газовая смесь, покидающая эту зону, характеризуется существенным отклонением от термодинамического равновесия, относительно низким содержанием H_2 и пониженным соотношением H_2/CO . Дальнейшее формирование состава происходит в ППЗ, где в отсутствие молекулярного кислорода реализуются процессы пиролиза непрореагировавших углеводородов и последующей паровой и углекислотной конверсии образующегося ацетилена. В результате возрастает концентрация H_2 , увеличивается отношение H_2/CO , а состав смеси приближается к равновесному.

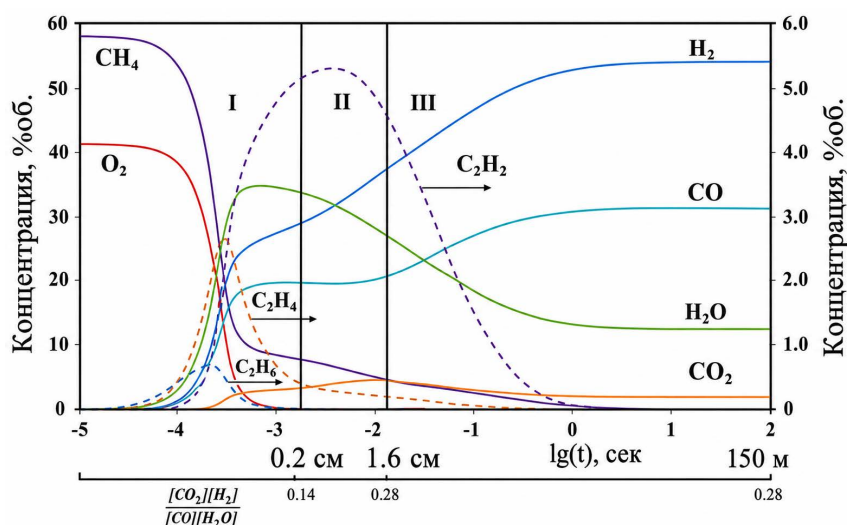


Рис. 4. Кинетика изменения концентрации продуктов при парциальном окислении метана. $O_2:CH_4 = 0,72:1$, $T = 1700\text{ K}$, $P = 1\text{ атм.}$

Таким образом, процессы, протекающие в ППЗ, оказывают определяющее влияние на формирование конечного состава газовой смеси и, соответственно, на технологические показатели процесса. Кинетическое моделирование показывает, что наиболее интенсивные изменения состава происходят на начальной стадии ППЗ при временах реакции порядка 0,1–0,5 с. Ключевым параметром, определяющим эффективность этих превращений, является температура газовой смеси на входе в ППЗ: ее повышение приводит к увеличению конверсии остаточных углеводородов и ацетилена, росту концентрации H_2 , увеличению отношения H_2/CO и, как следствие, повышению выхода водорода на моль исходного углеводорода.

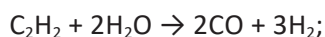
В качестве основных реагентов, обеспечивающих конверсию в ППЗ, выступают H_2O и CO_2 . Их присутствие (в том числе при дополнительном вводе в исходную смесь) способствует интенсификации процессов риформинга и приводит к улучшению технико-экономических показателей.

Одним из принципиально важных результатов кинетического анализа является установление характерной последовательности превращений метана в условиях некаталитического парциального окисления. Показано, что после завершения окислительной стадии при температурах $T < 1800$ К, даже при наличии значительных концентраций H_2O и CO_2 , пиролиз метана с образованием ацетилена протекает с существенно более высокой скоростью по сравнению с реакциями его паровой и углекислотной конверсии. Таким образом, образование компонентов синтез-газа происходит преимущественно на последующих стадиях переработки ацетилена. Ключевые реакции, определяющие состав продуктов в ППЗ, включают:

Пиролиз метана до ацетилена:



паровая конверсия ацетилена:



паровая конверсия CO (процесс WGSР):



Следует отметить, что для углеводородов состава C_{2+} в условиях некаталитической конверсии характерна иная последовательность: первоначально с высокой скоростью протекает их крекинг, преимущественно до этилена, после чего реализуются более медленные окислительные

процессы с участием O_2 , H_2O и CO_2 .

Результаты кинетического моделирования также указывают на возможность целенаправленной оптимизации процессов в ППЗ матричного реактора. В частности, показано, что дополнительная подача CO_2 (как извлекаемого из продуктов, так и вводимого извне) способствует увеличению выхода синтез-газа и корректировке его состава, что может рассматриваться как эффективный способ утилизации диоксида углерода.

3. Основные достоинства матричной конверсии и варианты ее применения

Матричная конверсия углеводородных газов представляет собой автотермический газофазный процесс получения синтез-газа, реализуемый без применения катализатора и внешнего подвода тепла. Автотермичность процесса обеспечивается сочетанием реакций парциального и полного окисления. Интенсивная внутренняя рекуперация тепла позволяет расширить диапазон перерабатываемого сырья, включая газы с высоким содержанием инертных компонентов, а также обеспечить устойчивость процесса и высокую энергоэффективность. Отсутствие катализатора снижает требования к очистке сырья и устраняет проблему зауглероживания. Процесс характеризуется высокой удельной производительностью, технологической простотой и хорошей масштабируемостью, что делает его перспективным для компактных и распределенных газохимических установок.

К настоящему времени разработан ряд демонстрационных установок матричной конверсии природного, попутного нефтяного, нефтезаводского газа и биогаза с производительностью по исходному газу до $10 \text{ м}^3/\text{ч}$ и рабочим давлением до 2,5 МПа. Экспериментальные исследования подтвердили высокую эффективность, производительность и устойчивость процесса, а также его хорошую управляемость при использовании различных окислителей (атмосферный воздух, обогащенный воздух, кислород) и широкого спектра углеводородного сырья, включая метан, модельные ПНГ и НЗГ, пропан-бутановую фракцию и биогаз. Разработанные технологические решения защищены более чем 10 патентами, охватываемыми как способы реализации процесса, так и конструктивные особенности реакторов.

Малотоннажная переработка природного и попутного газа. На основе технологии матричной ПНГ атмосферным воздухом предложена техно-

логия малотоннажной промысловой переработки газа в жидкие продукты [19]. Использование воздуха в качестве окислителя и отказ от рециркуляции синтез-газа в пользу каскадной схемы (2-3 реактора) позволяют существенно упростить технологию и повысить ее безопасность при эксплуатации в условиях промыслов. Получаемый азотсодержащий синтез-газ может быть эффективно использован для синтеза жидких продуктов (метанол, диметиловый эфир (ДМЭ), синтетические жидкие углеводороды), что особенно актуально для удаленных и малодебитных месторождений, где транспортировка газа экономически нецелесообразна. Прямое преобразование газа в жидкие продукты на месте добычи позволяет существенно снизить капитальные и транспортные затраты. Дополнительным преимуществом технологии является возможность использования метанола непосредственно на промысле в качестве ингибитора гидратообразования. Кроме того, разбавление синтез-газа азотом снижает тепловыделение в каталитическом слое, что позволяет использовать реакторы увеличенного диаметра и компенсировать усложнение технологической схемы за счет снижения капитальных затрат [20, 21].

Переработка биогаза и возобновляемого сырья. Весьма актуальным направлением использования матричных конверторов является малотоннажная переработка биогаза и других видов биосырья, характеризующихся низкой энергетической плотностью. Для таких систем централизованные технологии, включая паровой риформинг, экономически неэффективны [22]. Матричная конверсия позволяет осуществлять локальную переработку биогаза с высоким содержанием CO_2 (до 50%) в азотсодержащий синтез-газ с последующим получением жидких биотоплив, например, по процессу Фишера-Тропша [19]. Это открывает возможности для децентрализованного производства топлив из возобновляемых источников.

Малотоннажное производство водорода. В связи с ростом спроса на водород разработаны комбинированные схемы, включающие матричную конверсию с последующей каталитической конверсией CO в H_2 по реакции водяного газа. Генерация водяного пара осуществляется за счет утилизации тепла отходящего газа, что позволяет сохранить автотермический характер процесса.

Комбинированные процессы и интеграция технологий. Разработан и запатентован комбинированный автотермический процесс получения метанола и водорода с низким уровнем вы-

бросов CO_2 , в котором большая часть углерода метана преобразуется в метанол [23]. Высокая температура синтез-газа после матричной конверсии позволяет интегрировать дополнительную стадию паровой конверсии метана и CO . Комбинация матричной и паровой конверсии метана позволяет корректировать и оптимизировать состав получаемого синтез-газа.

Дополнительно возможна интеграция матричного конвертора с твердооксидными топливными элементами (ТОТЭ), что позволяет одновременно оптимизировать процессы генерации синтез-газа и поддержания высокотемпературного режима работы ТОТЭ без использования энергоемкого парового риформинга.

4. Заключение

Современные энергетика и нефтехимия сталкиваются с необходимостью разработки принципиально новых технологий, обеспечивающих более эффективную и компактную переработку значительных ресурсов природного газа в транспортируемые и востребованные продукты – жидкие топлива, водород и базовые химические соединения. В этом контексте интерес представляет некаталитическая матричная конверсия, которая благодаря автотермическому режиму, интенсивной внутренней рекуперации тепла и газофазному характеру процесса демонстрирует ряд существенных преимуществ по сравнению с традиционными технологиями риформинга и парциального окисления. Полученные на демонстрационных установках результаты подтверждают реализуемость данного подхода и его высокий потенциал с точки зрения энергоэффективности, компактности и технологической гибкости.

Ключевым этапом дальнейшего развития является переход от лабораторных и демонстрационных систем к пилотным установкам повышенной производительности с расходами газа порядка сотен и тысяч $\text{м}^3/\text{ч}$. При этом требуется решение комплекса фундаментальных и прикладных задач. В частности, необходимы систематические исследования режимов конверсии при повышенных давлениях и скоростях потока, характерных для промышленной эксплуатации, а также разработка научно обоснованных критериев масштабирования, учитывающих взаимосвязь тепломассопереноса, кинетики и гидродинамики процесса.

Особое значение имеет изучение долговечности и термохимической стабильности материалов матрицы, функционирующих в условиях высоких

температур и агрессивной реакционной среды. Требуется разработка подходов к повышению ресурса жаропрочных пористых структур, включая оптимизацию их состава, микроструктуры и теплофизических свойств.

Существенный вклад в развитие технологии должно внести численное моделирование, прежде всего методы CFD, позволяющие проводить многопараметрическую оптимизацию конструкции реакторов и режимов их работы. К числу приоритетных задач относятся: определение оптимальной геометрии и толщины матрицы, ее проницаемости и эффективной теплопроводности; анализ распределения потоков и скоростей газа по поверхности матрицы; разработка композитных и градиентных матричных структур; минимизация тепловых потерь через стенки и конструктивные элементы реактора; обеспечение устойчивости фронта реакции в широком диапазоне нагрузок.

Несмотря на сохраняющиеся научно-технические вызовы, уже на текущем этапе можно утверждать, что матричная конверсия открывает возможность решения ряда принципиальных задач газохимии. В частности, она создает основу для формирования распределенных систем малотоннажного производства водорода непосредственно в местах его потребления. Использование локальных источников углеводородного сырья, включая природный газ, попутные газы и биогаз, позволяет реализовать децентрализованные схемы генерации водорода, устраняющие необходимость его транспортировки и длительного хранения – факторов, которые в настоящее время существенно ограничивают развитие водородной энергетики.

Таким образом, матричная конверсия может рассматриваться не только как альтернативная технология получения синтез-газа, но и как потенциальная платформа для создания новой архитектуры распределенной энергетики и газохимии, основанной на локальной переработке углеводородного и возобновляемого сырья.

Author Contributions

Aleksey Nikitin: Conceptualization; Methodology; Formal Analysis; Writing – Original Draft. **Aleksei Ozerskii:** Software; Investigation. **Igor Sedov:** Data Curation; Formal Analysis; Validation. **Valery Savchenko:** Formal Analysis; Validation. **Vladimir Arutyunov:** Supervision; Conceptualization; Writing – Review & Editing.

Заявление о конфликте интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Благодарность

Экспериментальная работа выполнена по теме Государственного задания FFSG-2024-0016, № государственной регистрации 124020500064-2.

Результаты моделирования получены в рамках программы фундаментальных научных исследований РФ «Химическая физика окисления, горения и взрыва», рег. № 125012200612-2 (№ ПТНИ 1024040200065-4).

References

- [1]. V.S. Arutyunov, G.V. Lisichkin. Energy resources of the 21st century: problems and forecasts. Can renewable energy sources replace fossil fuels? *Russian Chemical Reviews* 86(8) (2017) 777-804. <https://doi.org/10.1070/RCR4723>.
- [2]. K. Aasberg-Petersen, I. Dybkjær, C.V. Ovesen, N.C. Schjødt, J. Sehested, et al. Natural gas to synthesis gas – Catalysts and catalytic processes. *Journal of Natural Gas Science and Engineering* 3 (2011) 423-459. <https://doi.org/10.1016/j.jngse.2011.03.004>.
- [3]. I. Dybkjær, K. Aasberg-Petersen. Synthesis gas technology: Large-scale applications. *Canadian Journal of Chemical Engineering* 94 (2016) 607-612. <https://doi.org/10.1002/cjce.22453>.
- [4]. E.A. Mazanets. In: Proc. 6th Nat. Gas Convers. Symp., Girdwood, Alaska, USA, 2001. *Studies in Surface Science and Catalysis* 136 (2001).
- [5]. C.M. Chen, D.L. Bennett, M.F. Carolan, E.P. Foster, W.L. Schinski, et al. ITM syngas ceramic membrane technology for synthesis gas production. In: Proc. 7th Nat. Gas Convers. Symp., Dalian, China, 2004. *Studies in Surface Science and Catalysis* 147 (2004) 55.
- [6]. T. Mazanec, S. Perry, L. Tonkovich, Y. Wang. Microchannel gas-to-liquids conversion – thinking big by thinking small. In: Proc. 7th Nat. Gas Convers. Symp., Dalian, China, 2004. *Studies in Surface Science and Catalysis* 147 (2004) 169.
- [7]. L.D. Schmidt. Modeling millisecond reactors. In: Proc. 6th Nat. Gas Convers. Symp., Girdwood, Alaska, USA, 2001. *Studies in Surface Science and Catalysis* 136 (2001).
- [8]. L.E. Basini, A. Guarinoni. Short Contact Time Catalytic Partial Oxidation (SCT-CPO) for synthesis gas processes and olefins production. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 52 (2013) 17023-17037. <https://doi.org/10.1021/ie402463m>.
- [9]. M. Toledo, V. Bubnovich, A. Saveliev, L. Kennedy. Hydrogen production in ultrarich combustion of

- hydrocarbon fuel in porous media. *International Journal of Hydrogen Energy* 34 (2009) 1818–1827.
- [10]. S.O. Dorofeenko, E.V. Polianczyk, M.V. Tsvetkov. Toward the ultimate efficiency of methane to syngas conversion by partial oxidation: A moving bed reactor with parallel preheating of reactants. *Fuel* 363 (2024) 131005. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2024.131005>.
- [11]. E.G. Lim, E.E. Dames, K.D. Cedrone, A.J. Acocella, T.R. Needham, et al. The Engine Reformer: Syngas production in an engine for compact gas-to-liquids synthesis. *Canadian Journal of Chemical Engineering* 94 (2016) 623–635. <https://doi.org/10.1002/cjce.22443>.
- [12]. R. Cornelissen, E. Tober, J. Kok, T. van de Meer. Generation of synthesis gas by partial oxidation of natural gas in a gas turbine. *Energy* 31 (2006) 3199–3207.
- [13]. M. Granovskiy. Integrated coproduction of power and syngas from natural gas to abate greenhouse gas emissions without economic penalties. *ACS Omega* 6 (2021) 16336–16342. <https://doi.org/10.1021/acsomega.1c00743>.
- [14]. A.A. Levikhin, A.A. Boryaev. High-temperature reactor for hydrogen production by partial oxidation of hydrocarbons. *International Journal of Hydrogen Energy* 48 (2023) 28187–28204. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2023.03.459>.
- [15]. K. Aasberg-Petersen, T.S. Christensen, I. Dybkjaer, J. Sehested, M. Østberg, et al. Synthesis gas production for FT synthesis. *Studies in Surface Science and Catalysis* 152 (2004) 258–405. [https://doi.org/10.1016/S0167-2991\(04\)80461-0](https://doi.org/10.1016/S0167-2991(04)80461-0).
- [16]. S. Soleimani, M. Lehner. Tri-reforming of methane: Thermodynamics, operating conditions, reactor technology and efficiency evaluation – A review. *Energies* 15 (2022) 7159. <https://doi.org/10.3390/en15197159>.
- [17]. A. Nikitin, A. Ozersky, V. Savchenko, I. Sedov, V. Shmelev, V.S. Arutyunov. Matrix conversion of natural gas to syngas: The main parameters of the process and possible applications. *Chemical Engineering Journal* 377 (2019) 120883. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2019.01.162>.
- [18]. V.I. Savchenko, Y.S. Zimin, A.V. Nikitin, I.V. Sedov, V.S. Arutyunov. Utilization of CO₂ in non-catalytic dry reforming of C₁–C₄ hydrocarbons. *Journal of CO₂ Utilization* 47 (2021) 101490. <https://doi.org/10.1016/j.jcou.2021.101490>.
- [19]. V.S. Arutyunov, L.N. Strekova, V.I. Savchenko, I.V. Sedov, A.V. Nikitin, et al. Prospects of conversion of hydrocarbon gases to liquid products based on nitrogen-rich synthesis gas. *Petroleum Chemistry* 59 (2019) 370–379. <https://doi.org/10.1134/S0965544119040029>.
- [20]. K. Hedden, A. Jess, T. Kuntze. From natural gas to liquid hydrocarbons (1). A new concept for the production of liquid hydrocarbons from natural gas in remote areas. *Oil Gas European Magazine* 3 (1994) 42–44.
- [21]. A. Jess, R. Popp, K. Hedden. Fischer–Tropsch synthesis with nitrogen-rich syngas: Fundamentals and reactor design aspects. *Applied Catalysis A: General* 186 (1999) 321–342.
- [22]. T. Kertthong, M. Schmid, G. Scheffknecht. Non-catalytic partial oxidation of methane in biomass-derived syngas with high steam and hydrogen content optimal for subsequent synthesis process. *Journal of the Energy Institute* 105 (2022) 251–261. <https://doi.org/10.1016/j.joei.2022.09.007>.
- [23]. V.S. Arutyunov, A.V. Nikitin, V.I. Savchenko, I.V. Sedov. Combined production of hydrogen and methanol without CO₂ emission based on matrix conversion of natural gas. *Doklady Chemistry* 513 (2023) 361–366. <https://doi.org/10.1134/S0012500823601018>.

About the Authors

A.V. Nikitin – Ph.D. (Chem.), Senior Researcher, N.N. Semenov FRC CP RAS, FRC PCPMC RAS, Russia
E-mail: ni_kit_in@rambler.ru
ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-8236-3854>

A.V. Ozerskii – Ph.D. (Chem.), Researcher, N.N. Semenov FRC CP RAS, Moscow, Russia
E-mail: alex.ozersky.1992@gmail.com
ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-6765-1401>

I.V. Sedov – Ph.D. (Chem.), Head of Department, FRC PCPMC RAS, Chernogolovka, Russia
E-mail: isedov@icp.ac.ru
ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-9648-489>

V.I. Savchenko – D.Sc. (Chem.), Prof., Chief Researcher, FRC PCPMC RAS, Chernogolovka, Russia
E-mail: savch1152@mail.ru
ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-9823-6844>

V.S. Arutyunov – Doctor of Chem.Sci., Head of Laboratory, N.N. Semenov FRC CP RAS, FRC PCPMC RAS, Russia
E-mail: v_arutyunov@mail.ru
ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-0339-0297>

Matrix conversion of methane: patterns, advantages and practical prospects**A.V. Nikitin^{1,2*}, A.V. Ozerskii¹, I.V. Sedov², V.I. Savchenko², V.S. Arutyunov^{1,2}**¹N.N. Semenov Federal Research Center for Chemical Physics RAS, Kosygina Str., 4, Moscow, Russia²Federal Research Center for Problems of Chemical Physics and Medicinal Chemistry RAS, Academician Semenov Ave., 1, Chernogolovka, Russia**ABSTRACT**

Significant reserves of unconventional natural gas in the Earth's crust make it possible to consider it, in the long term, not only as a key energy source but also as an economically attractive feedstock for the production of a wide range of basic petrochemical products. At the same time, the development of gas chemistry is to a large extent constrained by the high technological complexity and energy intensity of multistage processes required for the conversion of methane into thermodynamically less stable compounds.

One of the promising approaches to overcoming these limitations is the technology of autothermal matrix conversion of natural gas into synthesis gas and hydrogen, based on internal heat recuperation of reaction products and implemented under conditions of surface combustion. This approach makes it possible to increase the thermal efficiency of the process and to simplify its process design.

In the present work, the main physicochemical principles of methane matrix conversion with air are considered, the results achieved to date are summarized, and the most promising directions for its practical application are analyzed.

Keywords: natural gas, matrix conversion, partial oxidation, synthesis gas**Метанның матрицалық түрленуі: заңдылықтары, артықшылықтары және практикалық перспективалары****А.В. Никитин^{1,2*}, А.В. Озерский¹, И.В. Седов², В.И. Савченко², В.С. Арутюнов^{1,2}**¹Н.Н. Семенов ат. РҒА химиялық физикасының федералды ғылыми-зерттеу орталығы, Косыгина к., 4, Мәскеу, Ресей²РҒА химиялық физика және дәрілік химия мәселелері жөніндегі федералды ғылыми-зерттеу орталығы, академик Семенов даң., 1, Черноголовка, Ресей**АҢДАТПА**

Жер қыртысындағы дәстүрлі емес табиғи газдың айтарлықтай қоры оны ұзақ мерзімді перспективада тек негізгі энергия көзі ретінде ғана емес, сонымен қатар негізгі мұнай-химия өнімдерінің кең ауқымын өндіру үшін экономикалық тұрғыдан тартымды шикізат ретінде қарастыруға мүмкіндік береді. Сонымен қатар, газ химиясының дамуы метанды термодинамикалық тұрғыдан тұрақсыз қосылыстарға айналдыру үшін қажетті көп сатылы процестердің жоғары технологиялық күрделілігі мен энергия сыйымдылығымен шектеледі.

Бұл шектеулерді жеңудің перспективалы тәсілдерінің бірі – реакция өнімдерінің ішкі жылуын қалпына келтіруге негізделген және беттік жану жағдайында жүзеге асырылатын табиғи газды синтез газына және сүтегіне автотермиялық матрицалық түрлендіру технологиясы. Бұл тәсіл процестің жылу тиімділігін арттыруға және оның процесін жобалауды жеңілдетуге мүмкіндік береді.

Осы жұмыста метан матрицасын ауамен түрлендірудің негізгі физика-химиялық принциптері қарастырылады, бүгінгі күнге дейін қол жеткізілген нәтижелер қорытындыланады және оны практикалық қолданудың ең перспективалы бағыттары талданады.

Түйін сөздер: табиғи газ, матрицалық түрлендіру, ішінара тотығу, синтез газы