УДК 661.68, 661.666, 66.088

ДОСЛІДЖЕННЯ ТЕПЛОФІЗИЧНИХ ХАРАКТЕРИСТИК ПРОЦЕСУ ПІРОЛІЗУ МЕТАНУ В ЕЛЕКТРОТЕРМІЧНОМУ ПСЕВДОЗРІДЖЕНОМУ ШАРІ

Сімейко К.В., канд. техн. наук

Інститут газу НАН України, вул. Дегтярівська, 39, 03113, Київ, Україна

<https://doi.org/10.31472/ihe.4.2018.12>

Наведено термодинамічні розрахунки процесу піролізу метану. Створені експериментальні установки з електротермічним псевдозрідженим шаром. Проведені експериментальні дослідження даного процесу та співставлені експериментальні дані з розрахунковими. Порівняльний аналіз різних типів реакторів з електротермічним псевдозрідженим шаром був проведений на основі теплофізичних характеристик процесу піролізу метану.

Приведены термодинамические расчеты процесса пиролиза метана. Созданы экспериментальные установки с электротермическим псевдоожженным слоем. Проведены экспериментальные исследования данного процесса и сопоставлены экспериментальные данные с расчетными. Сравнительный анализ разных типов реакторов с электротермическим псевдоожженным слоем был проведенный на основе теплофизических характеристик процесса пиролиза метана.

Thermodynamic calculations of the process of methane pyrolysis are given. Experimental plants with electrothermal fluidized bed have been created. Experimental studies of this process had been carried out and experimental data were compared with the calculations. Comparative analysis of different types of reactors with electrothermal fluidized bed has been based on thermophysical characteristics of the process of methane pyrolysis.

Бібл. 18, рис. 2, табл. 3.

Ключові слова: метан, піроліз, електротермічний псевдозріджений шар, водень, піровуглець.

d – діаметр частинок кварцового піску, м;
 E – повна внутрішня енергія, кДж/кг;
 F – площа перерізу реакційної зони, м²;
 G_{CH_4} – витрата метану, м³/с;
 I – ентальпія, кДж/кг;
 k – коефіцієнт переведення у мольні частки або об'ємні частки, кг/кмоль або кг/м³;
 M – кількість індивідуальних речовин (газів) у вихідній суміші;
 N – число псевдозрідження;
 Nu – критерій Нуссельта;
 Re – критерій Рейнольдса;

w – швидкість потоку газу, м/с;
 $w_{кр.}$ – швидкість початку псевдозрідження, м/с;
 ΔC – кількість вуглецю, яка залишилася в реакторі, г·атом;
 ΣC і ΣH – молярні кількості вуглецю і водню, г·атом;
 v_{CH_4} – в'язкість метану, Па·с;
 σ_{C^*} , σ_{H^*} – коефіцієнти, що визначають кількість атомів C або H в i -му газі;
 x_i – молярні частки i -го газу, %_{об.};
 ψ – співвідношення вуглець/водень;
 ЕТПШ – електротермічний псевдозріджений шар.

Вступ

Питання раціонального і ефективного використання вуглеводневої сировини давно є предметом інтенсивних і різнопланових досліджень вчених. Основними продуктами під час високотемпературного піролізу метану є вуглець та водень. Відповідно до класифікації П.А. Теснера [1] існують два типи піровуглецю, структура та властивості яких визначаються температурами утворення: низькотемпературний (800...1100 °С) і високотемпературний (1400...2200 °С). В іншому джерелі [2], вуглецеві покриття, утворені шляхом розкладання вуглеводнів при температурах 800...1400 °С називають піровуглем, а відкладення, утворені при температурах 1900...2200 °С – пірографітом. Завдяки своїм унікальним фізико-хімічним властивостям піровуглець та пірографіт можуть застосовуватись у атомній енергетиці, спецметалургії, машинобудуванні, ра-

кетобудівництві, медицині, реакторобудуванні, електротехніці [3]. Водень є енергетично вигідним та екологічно чистим енергоносієм. Крім енергетики водень знаходить застосування в багатьох галузях: у хімічному синтезі, термічній обробці металів і т.п.. Враховуючи важливу прикладну цінність продуктів процесу піролізу метану дослідження у цьому напрямі є актуальними.

Аналіз літератури. Дослідження піролізу вуглеводневих газів у реакторах з електротермічним псевдозрідженим шаром (ЕТПШ) проводили наступні вчені: Махорін К.Е., Курбаков С.Д., Кожан О.П., Богомолов В.А., Сукачев А.І., Карлін В.В. та ін. На деякий час науковий інтерес до цього напрямку згас. Але зараз, завдяки актуальним запитам енергетики, матеріалознавства, нанотехнологій та інш. цей інтерес відновився. Дослідженню теплофізичних характеристик, механізмів та кінетики утворення піровуглецю і пірографіту при-

свячена велика кількість робіт, у т.ч. Теснера П.А., Becker A.K., Huttering K.J., Сачкова В.А., Магарила Р.З., Гуріна В.А., Гуріна І.В., С.Ю. Сасенка та ін. Аналіз останніх публікацій показав, що на даний час проводяться дослідження з кінетики процесу піролізу [4-8], каталітичного синтезу вуглецевих наноматеріалів [9], дослідженню утворення і структури вуглецевих фаз [10-11]. Незважаючи на велику кількість робіт з дослідження піролізу метану, проведення даного процесу у електротермічному псевдозрідженому шарі вивчено недостатньо.

Метою дослідження описаного в статті є визначення теплофізичних характеристик процесу піролізу метану (основні продукти реакції водень та піровуглець) у реакторах з різним типом ЕТПШ.

Методи дослідження. Дослідження ґрунтуються на експериментальних методах вивчення піролізу вуглеводневих газів в ЕТПШ. Аналіз складу вихідного та скидного газу визначався за допомогою хроматографу Agilent 6890 N (США). Термодинамічні розрахунки проводилися з використанням програми TERRA. Для опису процесів в електротермічному псевдоожиженому шарі використовувалися методи теорії тепломасообміну.

Розрахункова частина. Рівноважний склад продуктів піролізу метану розрахований за допомогою програми TERRA (пунктирні лінії на рис.2) показав, що кількість виходу вуглецю і водню після 1000 К практично не змінюється.

Повна ентальпія і повна внутрішня енергія є адитивними функціями, тому вони можуть обчислені як сума всіх простих речовин, що утворюють систему (рис. 1).

Як видно з рис. 1 значне збільшення I та E відбувається у діапазоні з 700 до 1000 К, що свідчить про

інтенсифікацію процесу.

На основі проведених розрахунків температура повного розкладання метану на вуглець та водень 800 К, однак при даній температурі вуглець утворюється у вигляді сажі (технічного вуглецю), тому аналізуючи літературні дані [1-2] було обрано базовий температурний інтервал досліджень 973 – 1373 К ($\approx 700 \dots 1100^\circ\text{C}$).

Експериментальна частина. Дослідження процесу піролізу метану проводився на лабораторній установці де у якості зовнішнього нагрівача (ЗН) використовується кільцевий електротермічний псевдозріджений шар [12] та на пілотній установці «класичним» електротермічним псевдозрідженим шаром [13]. У якості матеріалу, на який осаджувався піровуглець використовували кварцовий пісок. У результаті проведених експериментів були одержані наступні експериментальні дані (табл.1, табл.2).

Більш детальна інформація про експериментальну частину, технічну складову процесу та характеристики нанесеного піровуглецевого покриття наведена у [3, 14, 15].

Обробка експериментальних даних. Для визначення вмісту вуглецю, який осаджується в результаті процесу, розроблена методика, яка дозволяє на основі даних газового аналізу, визначати кількість осадженого вуглецю. Причиною, яка вимагає створення такої методики є те, що в експерименті досить легко виміряти кількість газів на вході в реактор ЕТПШ і важко точно визначити кількість газу, що виходить з реактору. Тому не можливо збалансувати кількість вуглецю яка поступає і виходить з реактору.

Для вирішення поставленої задачі використовується атомно-молярні співвідношення елементів, що утворюють газову фазу, в нашому випадку це співвідношення

Рис. 1. Залежність повної ентальпії (I) та повної внутрішньої енергії (E) від температури піролізу метану.

Таблиця 1. Результати піролізу метану у лабораторній установці з зовнішнім нагріванням ЕТПШ [17]

		CH ₄	H ₂	C ₂ H ₂	C ₂ H ₄	C ₂ H ₆	C ₃ H ₆	C ₃ H ₈	iC ₄ H ₁₀	nC ₄ H ₁₀	CO ₂	H ₂ O
на вході, %об.		88,56	0	0	0	7,58	0,03	1,26	0,14	0,24	0,97	1,22
на виході, %об.	973 K	77,07	15,72	0	0,96	3,40	0,15	0,39	0	0,05	0,60	1,62
	1273 K	56,10	39,14	1,21	1,25	0	0,03	0	0	0	0,28	1,82
	1373 K	42,96	53,11	1,12	0,78	0	0	0	0	0	0,15	1,88

Таблиця 2. Результати піролізу метану у пілотній установці з «класичним» ЕТПШ [18]

		CH ₄	H ₂	C ₂ H ₂	C ₂ H ₄	C ₂ H ₆	C ₃ H ₆	C ₃ H ₈	iC ₄ H ₁₀	nC ₄ H ₁₀	CO ₂	H ₂ O
на вході, %об.		97,09	0	0	0	2,27	0	0	0	0	0,05	0,58
на виході, %об.	1073 K	68,08	29,12	0	1,40	0,43	0	0	0	0	0,97	0
	1173 K	54,10	42,84	0	1,46	0,43	0	0	0	0	1,17	0
	1373 K	32,99	65,75	0	0,58	0,11	0	0	0	0	0,57	0

між кількістю вуглецю та водню. Для вуглеводневої газової фази будь якою складності, з числом компонентів M і об'ємом, наприклад, 1 нм³ можна записати :

$$\sum C = \sum_{i=1}^M x_i \cdot \sigma_{Ci}, \quad (1)$$

$$\sum H = \sum_{i=1}^M x_i \cdot \sigma_{Hi}, \quad (2)$$

де $\sum C$ і $\sum H$ молярні кількості вуглецю і водню, σ_{Ci} , σ_{Hi} – молярні частки i -го газу у вихідній суміші, σ_{Ci} , σ_{Hi} – коефіцієнти, що визначають кількість атомів C або H в i -му газі, M – кількість індивідуальних речовин (газів) у вихідній суміші.

Тоді, наприклад, для суміші, що складається з CO, CO₂, H₂, H₂O, CH₄, C_nH_m ... молярні кількості вуглецю і водню визначаються так:

$$\sum C = x_{CO} + x_{CO_2} + x_{CH_4} + n \cdot x_{C_nH_m} \dots, \quad (3)$$

$$\sum H = 4x_{CH_4} + 6x_{C_2H_6} + 8x_{C_3H_8} + m \cdot x_{C_nH_m} \dots, \quad (4)$$

де x_i – це величини, які беруться з газового аналізу, який зазвичай визначається у процентах об'єму V_p , %об

Для вихідного і скидного газу співвідношення вуглець/водень, у загальному випадку будуть різні:

$$\psi' = \frac{\sum C'}{\sum H'}, \quad (5)$$

$$\psi'' = \frac{\sum C''}{\sum H''}, \quad (6)$$

де ψ' – співвідношення для вихідного газу, ψ'' – співвідношення для скидного газу, $\sum C''$ можна визначити наступним чином:

$$\sum C'' = \sum C' - \Delta C, \quad (7)$$

де ΔC – кількість вуглецю, яка залишилася в реакторі. Відношення $\sum C'' / \sum H''$ вираховується з даних газового аналізу, його величина не залежить від кількості скидного газу, а визначається тільки його складом.

Зважаючи на те, що кількість атомів водню, або маса водню, що проходить через реактор залишаються без зміни можна записати, що

$$\frac{\sum C' - \Delta C}{\sum H'} = \psi'', \quad (8)$$

звідки одержується формула, яка визначає кількість вуглецю осадженого в реакторі в розрахунку на моль або на 1 нм³ вихідного газу:

$$\Delta C = (\sum C' - \psi'' \cdot \sum H') \cdot k_c, \quad (9)$$

де $k_c = 12$ кг/кмоль, або 0,535 кг/нм³.

На основі описаних вище розрахунків одержано кількість утвореного вуглецю, який переведено в мольні співвідношення. Результати узагальнено і порівняно з розрахунками програми TERRA (рис. 2). Оскільки предметом дослідження є такі продукти піролізу як піровуглець та водень, вміст інших гомологів метану у графік на рис. 2 включено не було.

Як видно з рис. 2 більш ефективно процес піролізу метану проходить у реакторі пілотної установи з класичним ЕТПШ. Інтенсифікацію процесу можна

пояснити впливом плазми мікророзряду між частинками псевдозрідженого шару та прямою генерацією теплоти в реакційній зоні реактору. Різниця з розрахунковими даними пояснюється невеликим часом контакту метану з реакційною зоною реактору.

Критерій Нуссельта визначається наступним чином:

$$Nu = 0,461 \cdot Re^{0,82} \cdot N^{-1}, \quad (10)$$

$$Re = \frac{w_{кр.} \cdot d}{\nu_{CH_4}}, \quad (11)$$

$$w_{кр.} = \frac{G_{CH_4}}{3600 \cdot F}, \quad (12)$$

$$N = \frac{w}{w_{кр.}}, \quad (11)$$

$$w = \frac{G_{CH_4}}{F}, \quad (12)$$

Результати розрахунку наведені у порівняльній таблиці 3. Даний розрахунок є умовним, адже не враховується вплив плазми мікророзряду на нагрівання частинок кварцевого піску.

Рис. 2. Залежність вмісту компонентів скидного газу та утвореного вуглецю від температури: а – лабораторна установка з зовнішнім нагріванням, б – пілотна установка з «класичним» ЕТПШ.

Таблиця 3. Порівняльна характеристика реакторів з ЕТПШ

Реактор/ показник	Nu	Термічний ККД	Вихід на режим 1073 К, хв.	Утворення водню при 1373 К, %об.	Утворення твердого вуглецю при 1373 К, мольні частки	Ефективність утворення твердого вуглецю (ef_c)
Лабораторна установка з зовнішнім ЕТПШ	39,5	31,8 [15]	35 [15]	53,11	0,2	0,4 [17]
Пілотна установка з класичним ЕТПШ	12	55,09 [16]	≈150 [16]	65,75	0,28	0,49 [17]

Порівняння показників ефективності процесу піролізу метану в реакторах з ЕТПШ наведено у табл. 3.

Як показує табл. 3 ефективніше проводити процес піролізу метану у реакторі з класичним ЕТПШ. Однак в реакторі з класичним ЕТПШ для розігріву реактору необхідно використовувати електропровідний дисперсний матеріал (зазвичай подрібнений електродний графіт), що може внести додаткові домішки у кінцевий продукт. У реакторі де у якості зовнішнього нагрівача використовується ЕТПШ, даної необхідності немає. Поєднання даних технічних рішень реалізовано у [18], на разі проходять експериментальні дослідження роботоспроможності даного реактору.

Висновки

1. На підставі проведених термодинамічних розрахунків рівноважні температури практично повного розкладу метану знаходяться в інтервалі 973...1373 К ($\approx 700...1100^\circ\text{C}$).

2. Розроблена і реалізована методика розрахунку кількості вуглецю який виділяється газами у процесі піролізу для випадків коли неможливо виміряти кількість високотемпературних скидних газів.

3. Показано, що електротермічний нагрів псевдозрідженого шару електропровідних частинок є набагато ефективнішим ніж зовнішній нагрів псевдозрідженого шару. Це пояснено прямим впливом плазми мікророзрядів і перевагами генерації тепла безпосередньо в середині псевдозрідженого шару.

На підставі проведених досліджень розроблена конструкційна схема реактору з ЕТПШ, який дозволяє використовувати одночасно і зовнішнє нагрівання і класичний ЕТПШ.

ЛІТЕРАТУРА

1. Теснер П.А. Образование углерода из углеводородов газовой фазы. – М.: Химия, 1972. – 321 с.
2. Степанов Ю.Б. Образование и удаление отложенный пироуглерода (графита) в коксовых печах / Ю.Б. Степанов, Н.А. Беркутов, В.Н. Круглов // Кокс и химия. – 2001. – № 8. – С. 18–26.

3. Семейко К.В. Исследование характеристик и свойств пироуглеродных покрытий // Энерготехнологии и ресурсосбережение. – 2018. – № 1. – С. 37 – 43.

4. Miroslaw Dors, Helena Nowakowska, Mariusz Jasiński, Jerzy Mizeraczyk Chemical Kinetics of Methane Pyrolysis in Microwave Plasma at Atmospheric Pressure // Plasma Chemistry and Plasma Processing. Volume 34, Issue 2, 2014. pp 313–326.

5. Maryam Younessi-Sinaki, Edgar A. Matida, Feridun Hamdullahpur Kinetic model of homogeneous thermal decomposition of methane and ethane // International journal of hydrogen energy. № 34 (2009). P. 3710–3716.

6. Cho Young-Gil, Choi Kyong-Hoon, Kim Young-Rok, Lee Sung-Han Kinetic investigation of oxidative Methane pyrolysis at high CH₄/O₂ ratio in a quartz flow microreactor below 1073 K // Bull. Korean Chem. Soc. 2008, Vol. 29, #8, P. 1609.

7. Jasinski M, Dors M, Mizeraczyk J. Production of hydrogen via methane reforming using atmospheric pressure microwave plasma // J Power Sources 181. 2008. P. 41–45.

8. Lee D.H., Kim K.T., Song Y.H., Kang W.S., Jo S. Mapping plasma chemistry in hydrocarbon fuel processing processes // Plasma Chemistry and Plasma Processing. 2013. Volume 33. P. 249–269

9. Стрельцов И.А., Мишаков И.В., Ведягин А.А., Мельгунов М.С. Синтез углеродных наноматериалов из углеводородного сырья на катализаторе Ni/SBA-15 // Химия в интересах устойчивого развития. № 22. 2014. С. 187–194.

10. Курбаков С. Д. Углеродные фазы, образующиеся при пиролизе газообразных углеводородов в реакционном объеме аппарата кипящего слоя // Неорганические материалы. – 2009. - том 45, № 1. - С. 26-37

11. Скачков В.А. Научно-технические основы формирования функциональных свойств композиционных материалов на основе углерода. дис. ... докт. техн. наук. 05.16.06 / Скачков Виктор Алексеевич. – Запорожье, 2018. – 392 с.

12. Пат. 86131 Україна, МПК (2013.01) B01J 8/18(2006.01), B01J 12/00. Реактор для высокотемпературних процесів / В.О. Богомолів, Б.І. Бондаренко,

О.П. Кожан, К.В. Сімейко; заявник і патентовласник: Інститут газу НАН України. – № u201309320; заявл. 25.07.2013; опубл. 10.12.2013, Бюл. №23. – 7 с.

13. Пат. 83147 Україна, МПК C10G 9/32 (2006.01). Реактор для піролізу газоподібних вуглеводнів / В.О. Богомолів, Б.І. Бондаренко, О.П. Кожан, К.В. Сімейко; заявник і патентовласник: Інститут газу НАН України. – № u201303318; заявл. 18.03.2013. опубл. 27.08.2013, Бюл. №16. – 7 с.

14. Богомолів В.А. Капсулирование кварцевого песка пироуглеродом в электротермическом псевдоожиженном слое / В.А. Богомолів, А.П. Кожан, Б.И. Бондаренко, А.И. Ховавко, К.В. Семейко // Энерготехнологии и ресурсосбережение. – 2013. – № 5. – С. 36–40.

15. Семейко К.В. Использование электротермического псевдоожиженного слоя в качестве внешнего нагревательного элемента реактора // Энерготехнологии и ресурсосбережение. – 2015. – № 1. – С. 58 – 64.

16. Семейко К.В. Теплові характеристики реактору для одержання капсульованого піровуглецем кварцево-

го піску при проходженні процесу піролізу метану / К.В. Сімейко // Вісник СумДУ. Серія Технічні науки. – 2013. – № 4. – С. 119–123.

17. Семейко К.В. Исследование процесса осаждения твердого углерода при пиролизе углеводородных газов / К.В. Семейко, В.К. Безуглый, А.П. Кожан, Б.И. Бондаренко // Энерготехнологии и ресурсосбережение. – 2015. – № 2. – С. 18 – 24.

18. Пат. 117157 Україна, МПК B01J 8/18(2006.01), B01J 8/42(2006.01), B01J 19/14(2006.01), C01B 33/021(2006.01), C01B33/021(2006.01), C30B25/10(2006.01), C30B 28/14(2006.01), C30B 31/12(2006.01). Реактор для високотемпературних процесів у псевдозрідженому шарі / К.В. Сімейко, Б.І. Бондаренко, О.П. Кожан, В.М. Дмитрієв; заявник і патентовласник: Інститут газу НАН України. – № a201506499; заявл. 01.07.2015; опубл. 26.06.2017, Бюл. № 12. – 8 с.

RESEARCH THERMAL CHARACTERISTICS OF THE PROCESS OF PYROLYSIS OF METHANE IN THE ELECTROTHERMAL FLUIDISED BED

Simeiko K.V.

The Gas Institute of National Academy of Science of Ukraine; 39, Degtyarivska Str., 03113, Kyiv, Ukraine, e-mail: k_simeyko@ukr.net

<https://doi.org/10.31472/ihe.4.2018.12>

The main products of high-temperature pyrolysis of methane are carbon and hydrogen. Due to their unique physical and chemical properties, pyrocarbon and pyrographite can be used in various industries and energy. Hydrogen is an energy-efficient and environmentally friendly energy carrier. Despite the large number of research works on methane pyrolysis, carrying out of this process in the electrothermal fluidized bed (ETFB) is not studied enough.

The purpose of the study is to determine the thermophysical characteristics of the process of methane pyrolysis (the main products of the reaction are hydrogen and pyrocarbon) in reactors with different types of ETFB.

The temperature of the complete disposition of methane to carbon and hydrogen is 800 K. This value is based on the thermodynamic calculations.

A laboratory and a pilot plant with a different type of ETFB have been created for this process.

Experimental studies of the process of methane pyrolysis had been carried out on these plants and experimental data were compared with the calculations.

The method which allows to determine the amount of precipitated carbon has been developed. It is based on the gas analysis data. Nusselt's criterion for different types of reactors with ETFB has been calculated.

It was showed that electrothermal heating of a fluidized bed of conductive particles is much more efficient than the external electric heating of a fluidized bed. This result is based on previous researches. It is explained by the direct influence of the plasma of microcircuits and by advantages of heat generation directly in the middle of the fluidized bed.

Taking into account the obtained results and the specifics of the application of the pyrocarbon coating on dielectric materials, a scheme of a reactor with ETFB, which allows to use both external heating and classical ETFB at the same time, has been developed.

References 18, figures 2, tables 3.

Key words: methane, pyrolysis, electrothermal fluidized bed, hydrogen, pyrocarbon.

1. *Tesner P.A.* Obrazovaniye ugleroda iz uglevodorodov gazovoy fazy [The formation of carbon from hydrocarbon gas phase]. M.: Khimiya [Chemistry], 1972. 321 p. (Rus.)

2. *Stepanov Yu.B., Berkutov N.A., Kruglov V.N.* Obrazovaniye i udaleniye otlozheniy pirougl'eroda (grafita) v koksovykh pechakh [Formation and removal of pyrocarbon (graphite) deposits in coke ovens]. Koks i khimiya [Coke and chemistry]. 2001. № 8. p. 18–26 (Rus.)

3. *Simeiko K.V.* Issledovaniye kharakteristik i svoystv pirougl'erodnykh pokrytiy [Research of characteristics and properties of pyrocarbon coatings]. – Jenergotekhnologii i resursosberezheniye [Energy technologies and resource]. 2018. № 1. p. 37 - 43 (Rus.)

4. *Miroslaw Dors, Helena Nowakowska, Mariusz Jasiński, Jerzy Mizeraczyk* Chemical Kinetics of Methane Pyrolysis in Microwave Plasma at Atmospheric Pressure // Plasma Chemistry and Plasma Processing. Volume 34, Issue 2, 2014, p. 313–326.

5. *Maryam Younessi-Sinaki, Edgar A. Matida, Feridun Hamdullahpur* Kinetic model of homogeneous thermal decomposition of methane and ethane // International journal of hydrogen energy. № 34 (2009). P. 3710–3716.

6. *Cho Young-Gil, Choi Kyong-Hoon, Kim Young-Rok, Lee Sung-Han* Kinetic investigation of oxidative Methane pyrolysis at high CH₄/O₂ ratio in a quartz flow microreactor below 1073 K // Bull. Korean Chem. Soc. 2008, Vol. 29, #8, P. 1609.

7. *Jasinski M, Dors M, Mizeraczyk J.* Production of hydrogen via methane reforming using atmospheric pressure microwave plasma // J Power Sources 181. 2008. P. 41–45.

8. *Lee D.H., Kim K.T., Song Y.H., Kang W.S., Jo S.* Mapping plasma chemistry in hydrocarbon fuel processing processes // Plasma Chemistry and Plasma Processing. 2013. Volume 33. P. 249–269

9. *Strel'tsov I.A., Mishakov I.V., Vedyagin A.A., Mel'gunov M.S.* Sintez uglerodnykh nanomaterialov iz uglevodorodnogo syr'ya na katalizatore Ni/SBA-15 [Synthesis of carbon nanomaterials from hydrocarbon feedstock on a Ni / SBA-15 catalyst]. – Khimiya v interesakh ustoychivogo razvitiya [Chemistry for Sustainable Development]. № 22. 2014. P. 187–194. (Rus.)

10. *Kurbakov S.D.* Uglerodnyye fazy, obrazuyushchiyesya pri pirolize gazoobraznykh uglevodorodov v reaktionnom ob'yeme apparata kipyashchego sloya [Carbon phases formed during the pyrolysis of gaseous hydrocarbons in the reaction space of a fluidized bed apparatus]. Neorganicheskiye materialy [Inorganic materials]. - 2009. vol. 45, № 1. p. 26-37 (Rus.)

11. *Skachkov V.A.* Nauchno-tehnicheskie osnovy formirovaniya funktsional'nykh svoystv kompozitsionnykh materialov na osnove ugleroda [Scientific and technical basis for the formation of the functional properties of composite materials based on carbon] dissertation of the doctor of technical sciences. Zaporozh'e. 2018. 392 p. (Rus.)

12. *Pat. 86131 Ukraine, B01J 8/18(2006.01), B01J 12/00.* Reaktor dlja vysokotemperaturnykh procesiv [Reactor for high temperature processes] / V.O. Bogomolov O.P.

Kozhan, B.I. Bondarenko, K.V. Simeiko; Applicant and patent holder: Gas institute of National academy of science of Ukraine. № u201309320; applic. date: 25.07.2013; publ. date: 10.12.2013. Bull № 23 (Ukr.)

13. *Pat. 83147 Ukrayina*, C10G 9/32 (2006.01). Reaktor dlya pirolizu hazopodibnykh vuhlevodniv [Reactor for pyrolysis of gaseous hydrocarbons] / V.O. Bohomolov, B.I. Bondarenko, O.P. Kozhan, K.V. Simeiko; Applicant and patent holder: Gas institute of National academy of science of Ukraine. № u201303318; applic. date: 18.03.2013; publ. date: 27.08.2013. Bull № 16 (Ukr.)

14. *Bogomolov V.O. Kozhan A.P., Bondarenko B.I., Khovavko O.I., Simeiko K.V.* Kapsulirovanie kvarcevoogo peska piouglerodom v jelektrotermicheskom psevdoozhizhenom sloe [Research of the process of quartz sand encapsulation by pyrolytic carbon]. *Jenergotehnologii i resursozberezhnie* [Energy technologies and resource]. 2013, № 5. p. 36–40 (Rus.)

15. *Simeiko K.V.* Ispolzovanie elektrotermicheskogo psevdoozhizhenogo sloya v kachestve vneshnego nagrevatel'nogo elementa reaktora [Efficiency of electrothermal fluidized bed applying as the outer heating element of reactor]. *Jenergotehnologii i resursozberezhnie* [Energy technologies and resource]. 2015, № 1. p. 58 – 64 (Rus.)

16. *Simeiko K.V.* Teplovi harakteristiki reaktoru dlya oderzhannya kapsulovanogo pirovugletsem kvartsevoogo pIsku pri prohodzhenni protsesu pIrolizu metanu [Thermal characteristics of the reactor for pyrocarbon encapsulated quartz sand while passing the pyrolysis of methane]. *Visnik SumDU. Seriya Tehnichni nauki* [Sumy State University. Series Technical Sciences.], 2013. № 4. p. 119 – 123 (Ukr.)

17. *Simeiko K.V., Bezuglyiy V.K., Kozhan A.P., Bondarenko B.I.* Issledovanie protsessa osazhdeniya tverdogo ugleroda pri pirolize uglevodorodnyih gazov [Research of the process of solid carbon deposition in the course of pyrolysis of hydrocarbon gases]. *Jenergotehnologii i resursozberezhnie* [Energy technologies and resource]. 2015, № 2. p. 18 – 24 (Rus.)

18. *Pat. 117157 Ukraine*, B01J 8/18(2006.01), B01J 8/42(2006.01), B01J19/14(2006.01), C01B33/021(2006.01), C01B 33/021(2006.01), C30B 25/10(2006.01), C30B 28/14(2006.01), C30B 31/12(2006.01). Reaktor dlja visokotemperaturnih procesiv u psevdoozhizhenomu shari [The reactor for high temperature processes in fluidized bed] / K.V. Simeiko, B.I. Bondarenko, O.P. Kozhan, V.M. Dmitriev; Applicant and patent holder: Gas institute of National academy of science of Ukraine. № a201506499; applic. date: 01.07.2015; publ. date: 26.06.2017, Bull № 12. (Ukr.)

Отримано 11.10.2018

Received 11.10.2018