

МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ И ОПТИМИЗАЦИЯ КОНСТРУКТИВНЫХ ПАРАМЕТРОВ ТЕХНОЛОГИЧЕСКОГО ОБОРУДОВАНИЯ ДЛЯ СИНТЕЗА МУЛЬТИГРАФЕНОВЫХ СТРУКТУР

*Нигматуллин И.Х., Грачева А.В., Губин В.Ю., Шуляк В.А., Демченко Д.В.,
Клюкова К.Е.
АО «ИНУМИТ», Москва*

Ключевые слова: математическое моделирование, пористые графитовые материалы, терморасширенный графит, уплотнительные материалы, технологические параметры, восстанавливаемость.

Аннотация. Рассмотрена возможность использования математического моделирования для предсказания поведения терморасширенного графита и его механических характеристик в зависимости от варьирования технологических параметров. Описано влияние точки входа сопла, подающего в реакторную зону окисленный графит, в горячую зону и его диаметра на процесс вспенивания терморасширенного графита. На основании законов гидродинамики и математического моделирования описаны основные доминирующие факторы, которые позволяют предсказывать в первом приближении свойства итогового материала из терморасширенного графита. Показано изменение восстанавливаемости, упругости и сжимаемости материала с использованием данных из модели.

MATHEMATICAL MODELING AND OPTIMIZATION OF DESIGN PARAMETERS OF TECHNOLOGICAL EQUIPMENT FOR SYNTHESIS OF MULTIGRAPHENE STRUCTURES

*Nigmatullin I.K., Gracheva A.V., Gubin V.Yu., Shulyak V.A., Demchenko D.V.,
Klyukova K.E.
JSC «NUMIT», Moscow*

Keywords: mathematical modeling, porous graphite materials, thermally expanded graphite, sealing materials, technological parameters, recovery.

Abstract. The possibility of using mathematical modeling to predict the behavior of thermally expanded graphite and its mechanical characteristics depending on the variation of technological parameters is considered. The influence of the inlet point of the nozzle feeding oxidized graphite into the reactor zone, into the hot zone and its diameter on the foaming process of thermally expanded graphite is described. Based on the laws of hydrodynamics and mathematical modeling, the main dominant factors that make it possible to predict the properties of the final thermally expanded graphite material in the first approximation are described. The change in the recoverability, elasticity, and compressibility of the material is shown using data from the model.

Введение. В современной промышленности производство материалов из графита сталкивается с серьезным технологическим барьером. Процесс высокотемпературного вспенивания в печи зачастую территориально отделен от зоны формирования готового полотна. Это обуславливает необходимость внедрения систем пневмотранспортировки, которые существенно удлиняют путь прохождения материала. На этом этапе хрупкие мультиграфеновые структуры [1] подвергаются воздействию интенсивных газодинамических факторов: аэродинамический износ (трение и соударение частиц со стенками тракта),

механическое разрушение (разрушение разветвленных структур под действием турбулентных пульсаций), неравномерность распределения (риск агломерации частиц перед предварительной прокаткой).

Отсутствие точных механизмов управления этими факторами критически снижает эксплуатационную надежность изделий. Применение компьютерного моделирования и вычислительной гидродинамики (CFD) позволяет перейти от эмпирических методов настройки оборудования к предиктивному анализу, прогнозируя структуру материала на основе моделирования мультифизических процессов. Объектом исследования является изучение процесса пневмотранспортировки и термического расширения окисленного графита с использованием методов математического моделирования и возможность предсказания поведения материала при заданных технологических параметрах.

Материалы и методы. Процесс получения ГФ (рис. 1) включает стадии очистки графита (99,5% С), интеркаляции азотной кислотой и термического расширения окисленного графита (ОГ) с последующей прокаткой до графитовой фольги (ГФ) [1].



Рис. 1. Схема получения терморасширенного графита и ГФ

Ключевым этапом является подача ОГ в кварцевый реактор горизонтальной печи через эжектор с фиксированным воздушным потоком. Для анализа этого процесса разработана математическая модель (рис. 2), рассматривающая межмолекулярный взрыв как систему взаимосвязанных явлений: газодинамики потока в канале, теплообмена и кинетики разложения интеркалята. Численное моделирование тепловых полей в цилиндрическом реакторе (длина 2 м, внутренний диаметр реакторной трубки 26 мм) выполнено методом конечных элементов [2, 3] с учетом реальных теплофизических характеристик материалов установки (кварц, фехраль, муллит, сталь AISI 304). Конструкция установки рассматривается не просто как набор труб с подоблостями течения, а как сложная термодинамическая система, где геометрия оборудования управляет потоками газа и их поведением, а те, в свою очередь, диктуют форму и свойства терморасширенных графитовых червяков.

Все механические испытания проводились на установке HLYS-5 с созданием статической нагрузки и контролем микрометрическими датчиками в соответствии с международным стандартом (рис. 3, а). За счёт разности толщин материала до и после снятия нагружения рассчитываются упругость, восстанавливаемость и сжимаемость. Испытания на разрыв проводились на образцах графитовой фольги размерами 150x25 мм (рис. 3, б).

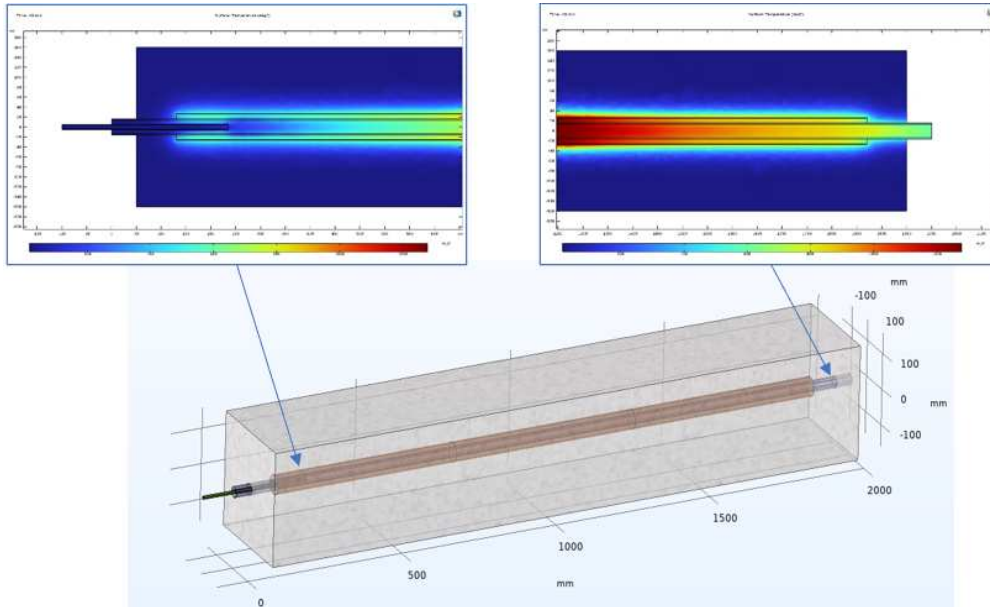


Рис 2. Модель геометрии установки с распределением температуры с учетом нагрева, теплопередачи, продувки



Рис. 3. а – испытания СВУ графитовой фольги на установке HLYS-5, б – испытания на разрыв ГФ

Первый и критический этап синтеза – это попадание холодного окисленного графита в раскаленную зону реактора. Эффективность расширения зависит от скорости подвода тепла. Если процесс пиролиза проводится медленно, то и объемное увеличение за счет выделяющихся газов между слоями происходит медленно. Если же происходит резкий тепловой удар, то давление газов резко раздвигает графеновые слои. Для предсказания этого процесса используется модель сопряженного теплообмена (Conjugate Heat Transfer). Она описывает, как тепло передается от резистивных нагревателей через стенку кварцевой трубки к движущемуся газу, а затем – к частице. Уравнение энергии здесь является ключевым прогностическим инструментом:

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho c_p (\mathbf{u} \cdot \nabla T) = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q_{rad}, \quad (1)$$

где ρ – плотность среды, c_p – удельная теплоемкость, $\frac{\partial T}{\partial t}$ – производная температуры по времени, $\mathbf{u}$ – вектор скорости движения газа, k – коэффициент теплопроводности среды, Q_{rad} – объемная плотность теплового потока, обусловленная радиационным теплообменом. Здесь член $\mathbf{u} \cdot \nabla T$ описывает

конвективный перенос: он объясняет, почему при слишком высокой скорости потока газ не успевает прогреться, и тепловой удар смягчается. Член Q_{rad} отвечает за радиационный нагрев, который при температурах 700-1000°C доминирует.

Моделирование позволяет вычислить точную точку в реакторе, где градиент температуры максимален. Если частица попадает в эту зону мгновенно, можно спрогнозировать получение терморасширенных частиц с высокой удельной поверхностью. В реальности это подтверждается ростом восстанавливаемости и упругости материала: частицы становятся более длинными и скрученными благодаря качественному раскрытию слоев. Высокое локальное значение ∇T приводит к увеличению длины частиц и их разветвленности (как показано на приборе СЭМ), что в реальности конвертируется в рост восстанавливаемости с 8,0% до 9,1% (рис. 4, а) и прочности на разрыв (рис. 4, б) с 3,78 до 5,62 МПа за счет лучшего вспенивания чешуек.

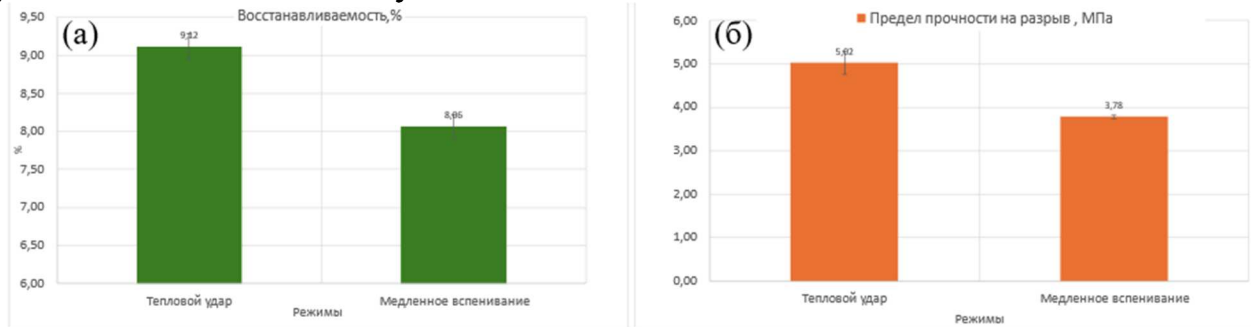


Рис. 4. а – восстанавливаемость графитовой фольги, б – прочность на разрыв

При переходе от идеальных лабораторных условий, которые позволяют в ламинарном режиме оценить прямое влияние температуры на расширение частиц, к промышленным, главным влияющим фактором становится турбулентность воздушного потока. В промышленном варианте появляется необходимость в дополнительном газовом потоке для переноса ТРГ, который создает мощные вихри и нарушает ламинарность изначального потока газа. Математически это описывается через усредненные уравнения Навье-Стокса (RANS), где ключевую роль играет кинетическая энергия турбулентности:

$$\rho \frac{\partial k}{\partial t} + \rho(u \cdot \nabla)k = \nabla \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \nabla k \right] + P_k - \rho \varepsilon, \quad (2)$$

где σ_k – число Прандтля.

Величина P_k (генерация турбулентности) в данной модели напрямую коррелирует с интенсивностью закручивания частиц. Моделирование показало, что турбулентные пульсации создают поперечные силы, которые заставляют длинные частицы сворачиваться в спирали, а именно создают вихреобразования, которые предотвращают агломерацию частиц и увеличивают время нахождения в зоне термоактивации. Это важнейший момент для предсказания прочности на разрыв. Турбулентная вязкость μ_t определяет интенсивность перемешивания. Скорость диссипации ε позволяет оценить энергозатраты потока на разрушение агломератов частиц. В модели это позволяет предсказать, насколько равномерно частицы распределятся по сечению реактора. Модель показывает, что при давлении поддува 0,6 МПа степень турбулентности достаточна для формирования частиц в форме «червячков» без полного дробления и с более равномерным

распределением по реактору и по размеру частиц [4]. При прессовании такие частицы цепляются друг за друга с большим количеством мест зацепления, так как их площади примерно одинаковы и распределение частиц по объёму более равномерно. Таким образом, математически рассчитывая параметры турбулентности в сопле, мы можем заранее предсказать, будет ли фольга прочной или её свойства ухудшатся из-за недостаточного зацепления чешуек. Фото ТРГ при давлении 0,1 и 0,6 МПа представлены на рисунке 5, а и б соответственно.

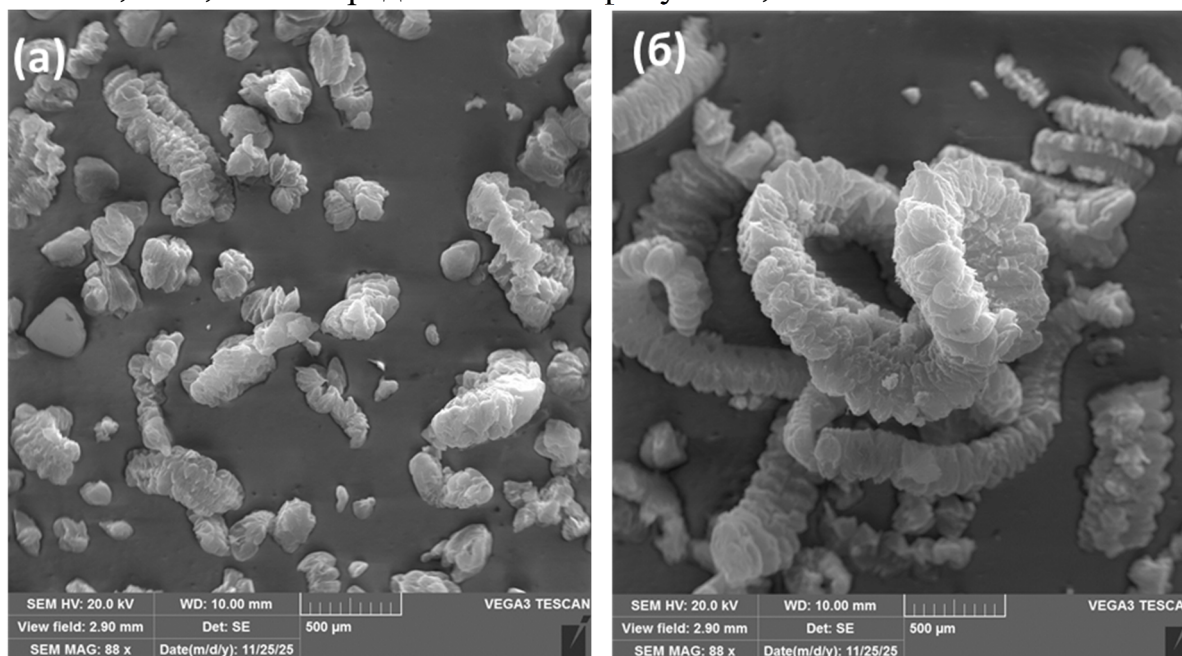


Рис. 5. а – СЭМ снимки ТРГ при низком давлении 0,1 МПа, б – при турбулентном высоком давлении 0,6 МПа

Диаметр подающей трубки (рис. 6) напрямую влияет на время нахождения материала в печи и характер его движения. Математическая зависимость выражена через уравнение неразрывности потока:

$$Q = A \cdot u \Rightarrow u = \frac{Q}{\pi R^2}, \quad (3)$$

где Q – объемный расход воздуха, A – площадь поперечного сечения трубки, R – радиус трубки.

При увеличении диаметра подающей трубки с 8 до 16 мм, площадь сечения растет в 4 раза, а скорость падает в те же 4 раза.

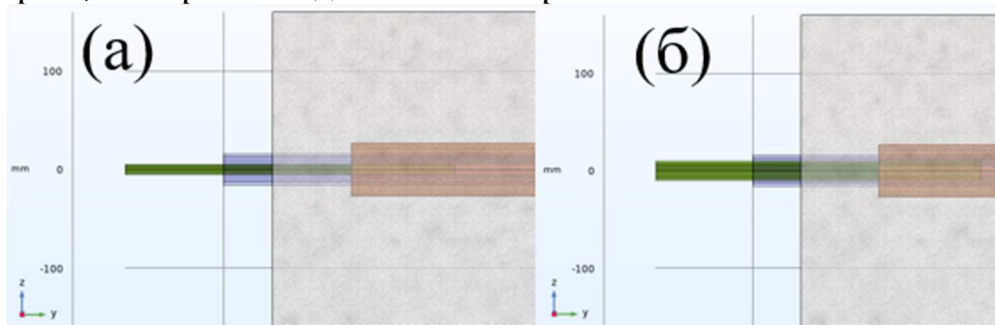


Рис. 6. а – исходный диаметр сопла 8 мм, б – увеличенный диаметр 16 мм

С точки зрения моделирования, снижение скорости означает увеличение времени нахождения частицы в зоне нагрева. Если скорость слишком высока, то

процесс термического расширения протекает неэффективно, так как частицы не успевают набрать критическую энергию для полного расширения [5, 6]. Однако модель также показывает критические зоны: слишком низкая скорость может привести к оседанию частиц.

Моделирование показало, что изменение диаметра подающей трубки до 16 мм создает слабо турбулентный режим на входе, что позволяет частицам начать расширение более равномерно, без преждевременного разрушения их длины и исключить термическую деструкцию получившейся спирали. Это напрямую отражается на прочности, которая в эксперименте выросла с 3,7 до 5,4 МПа, подтверждая смоделированный прогноз.

Следующим этапом было моделирование позиционирования сопла и управление температурным градиентом. Вылет сопловой трубки – это параметр, определяющий, где именно начнется реакция. Внутри реактора температура распределена неравномерно: у входа она комнатная, а через 40-60 см достигает максимума. Математическая модель учитывает коэффициент облученности и радиационный баланс:

$$J = \varepsilon e_b(T) + \rho_d G, \quad (4)$$

где ε – коэффициент излучательной способности материала, e_b – энергетическая светимость абсолютно чёрного тела, ρ_d – коэффициент отражения поверхности, G – облучённость поверхности.

Моделирование различных положений сопла (от 50 до 200 мм) позволило выявить эффект теплового экранирования. При глубоком введении трубки (200 мм) частицы вылетают в очень узкое пространство, где они начинают заслонять друг друга от теплового излучения стенок реактора. Математически это выражается в падении локальной облученности.

$$\Phi_{12} = \frac{1}{A_1} \int_{A_1} \int_{A_2} \frac{\cos \theta_1 \cos \theta_2}{\pi r^2} dA_1 dA_2, \quad (5)$$

где A_1 и A_2 – площади излучающей и поглощающей поверхностей, θ_1 и θ_2 – углы между нормалью к площадям A_1 и A_2 и линией, соединяющей эти площади.

Моделирование показало, что оптимальная точка – 100-150 мм. Здесь частица попадает в область, где газ уже нагрет, сама трубка не перегрета (сталь не начинает терять устойчивость), скорость потока частиц лежит в необходимом диапазоне 0,5-1 м/с, а плотность потока частиц еще позволяет частицам не экранировать излучение от стенок.

Это положение обеспечивает максимальную восстанавливаемость (способность материала возвращать форму после сжатия). Если же сдвинуть сопло глубже, модель прогнозирует рост нестабильности свойств, что и подтверждается на практике увеличением статистического разброса измеряемых характеристик, так как частицы начинают вспениваться уже в самой трубке, которая сама прогревается до 300-400°C, что может приводить к кратковременному изменению потока, забиванию трубки, её быстрому сгоранию, от чего уже сами частицы трубки могут оказаться в потоке терморасширенного графита, что недопустимо.

Математическое моделирование в данной работе – это современный подход к проектированию в машиностроении, позволяющий исключить возможные ошибки. Доказано, что: турбулентность – это основной параметр, показывающий

как частицы будут сцепляться между собой (корреляция прочности); уравнение теплового баланса – это инструмент для регулирования упругости и восстанавливаемости; геометрические параметры (диаметр и вылет подающей трубки) – это инструменты, позволяющие удерживать процесс в зоне максимальной эффективности, избегая зон термического разрушения или недостаточного расширения.

Таким образом, оптимизированные условия работы установки, продиктованные смоделированными расчетами (диаметр подающей трубки 16 мм, вылет 100 мм, давление 0,6 МПа) обеспечивают синтез материала с наилучшим комплексом эксплуатационных характеристик (восстанавливаемости, упругости и прочности на разрыв).

Заключение. Математическая модель доказала, что для получения высокопрочной и упругой графитовой фольги необходимо сочетать слабо турбулентный режим в зоне впрыска (сопло 16 мм) для сохранения длины частиц и сильно турбулентный режим в поддуве для их скручивания и предотвращения агломерации. Использование численных методов позволяет трансформировать эмпирический подбор параметров в научно обоснованное проектирование машиностроительных комплексов с прогнозированием свойств материала ещё до начала производственного цикла.

Список источников

1. Dowell M.B., Howard R.A. Tensile and Compressive Properties of Flexible Graphite Foils // Carbon. 1986, vol. 24(3), pp. 311-323. DOI: 10.1016/0008-6223(86)90232-0.
2. Zienkiewicz O.C., Taylor R.L. The Finite Element Method. – 6th ed. – Butterworth-Heinemann, Oxford, UK, 2005. – Vol. 1-3.
3. Cook R.D., Malkus D.S., Plesha M.E., Witt R.J., Concepts and Applications of Finite Element Analysis. – 4th ed. – Wiley, New York, 2002.
4. ASTM International, ASTM F36 – Standard Test Method for Compressibility and Recovery of Gasket Materials. – ASTM International, West Conshohocken, PA, USA, 2015.
5. Shulyak V.A., Morozov N.S., Minushkin R.A., Klyukova K.E., Gubin V.Yu., Gracheva A.V., Chebotarev S.N., Avdeev V.V. Effect of Intermolecular Explosion on Thermal Conductivity in Multi-Graphene Structures // Applied Physics Letters. 2025, vol. 126(24), p. 242202. DOI: 10.1063/5.0269483.
6. Leng Y., Gu J., Cao W., Zhang T.-Y., Influences of Density and Flake Size on the Mechanical Properties of Flexible Graphite // Carbon. 1998, vol. 36(7-8), pp. 875-881. DOI: 10.1016/S0008-6223(97)00196-6.

Сведения об авторах:

Нигматуллин Ильдар Хамзаевич – ведущий конструктор;

Грачева Александра Владимировна – ведущий инженер по научно-технической информации;

Губин Виктор Юрьевич – старший инженер-электронщик;

Шуляк Владимир Алексеевич – инженер по научно-технической информации;

Демченко Давид Васильевич – начальник отдела;

Клюкова Кристина Евгеньевна – научный сотрудник.