

КРИТИЧЕСКИЕ УСЛОВИЯ ПОТЕРИ ГОМОГЕННОСТИ ПСЕВДООЖИЖЕННОГО СЛОЯ ПРИ КАТАЛИТИЧЕСКОМ СИНТЕЗЕ МУНТ

**^аРабинович О.С., ^аМалиновский А.И., ^аЛях М.Ю., ^бКузнецов В.Л., ^бМосеенков С.И.,
^бЗаворин А.В., ^бГолубцов Г.В., ^бГойдин В.В.**

^а *Институт тепло- и массообмена им. А.В. Лыкова НАНБ, Минск, Беларусь*

^б *Институт катализа им. Г.К. Борескова СО РАН, Новосибирск, Россия*

Каталитический синтез многостенных углеродных нанотрубок (МУНТ) из углеродсодержащих газов в псевдоожигенном слое (ПС) в настоящее время является хорошо разработанной технологией, имеющей ряд несомненных преимуществ по отношению к другим методам получения МУНТ. Использование катализаторов с высокой эффективностью (100 г МУНТ и более на 1 г катализатора) позволило достигнуть рекордных удельных производительностей процесса – около 1 кг МУНТ в час в реакторе с поперечным диаметром 0.25 м – при низком остаточном содержании катализатора в продукте (менее 5 %) и узком распределении по диаметрам получаемых МУНТ.

Одной из серьёзных проблем, сдерживающих широкое применение рассматриваемой технологии, является потеря однородности ПС. При определённых условиях, зависящих от типа катализатора и числовой плотностью его частиц в реакторе, происходит образование больших кластеров МУНТ, оседающих на дно и стенки реактора, возникают струйные течения газа и сильные пульсации давления. В конечном счете это приводит к снижению производительности и степени конверсии реагентов, ухудшению качества синтезируемых МУНТ. Задача определения конкретных причин и условий, приводящих к этому негативному явлению, является практически важной.

В работе [1] на основании обширного экспериментального материала показано, что главной причиной образования больших кластеров при синтезе МУНТ является высокая когезия первичных и вторичных агломератов МУНТ, характерная для определённых типов катализаторов. Когезионные свойства агломератов МУНТ проявляются особенно сильно в начальный период роста нанотрубок, порядка 10 минут. Это обстоятельство подсказывает путь к предотвращению образования больших кластеров МУНТ: необходимо, чтобы после загрузки свежего катализатора числовая плотность его частиц не была слишком большой. В той же работе предложена приближённая теоретическая модель, позволяющая предсказать условия потери гомогенности ПС.

В настоящей работе, с целью более полного понимания процессов, приводящих к образованию больших кластеров МУНТ при их синтезе, проведено моделирование псевдоожигенного слоя методом дискретных частиц (дискретных элементов, DEM). Выбор параметров использованной модели, главным среди которых является энергия когезии первичных кластеров, основан на сопоставлении результатов моделирования с экспериментальными характеристиками движения слоя МУНТ в горизонтальном вращающемся барабане. Анализ поведения псевдоожигенного слоя МУНТ в реакторе с ПС основан на расчётных данных о зависимости средней относительной скорости движения агломератов и радиальной функции их распределения от энергии когезии и концентрации агломератов с высокой когезией. Показано, что при высокой энергии когезии существует достаточно резкая граница по концентрации активных в когезионном отношении агломератов МУНТ, разделяющая режимы с гомогенным псевдоожигением от режимов образования больших кластеров. Эти результаты позволяют выработать практические критерии для выбора катализаторов и режимных параметров процесса, обеспечивающих высокопроизводительный каталитический синтез МУНТ в ПС.

Библиографические ссылки

1. Kuznetsov V.L. et al. / Chem. Eng. J. 2022. Vol. 447. P. 137391.