

6D072400 – Технологиялық машиналар және жабдықтар мамандығы
бойынша PhD философия докторы дәрежесін алуға дайындалған
диссертацияның

АННОТАЦИЯСЫ

Казенова Айкерим Онгарбековна

Химиялық аппараттарда термодинамикалық тұрақсыз дисперсті жүйелердің фракциялық құрамын тұрақтандыру әдістерін және модельдерін жасау

Диссертациялық зерттеудің өзектілігі. Физикалық-химиялық айналулар дисперстік фазаны агрегациялау үдерістерімен қоса жүретін технологиялық процестер химиялық, фармацевтикалық, металлургиялық және басқа да өнеркәсіп салаларындағы технологиялық циклдің негізін құрайды. Алайда, жұмыстардың едәуір санына қарамастан, осы саладағы көптеген мәселелер нашар зерттелген, ал күрделі физикалық-химиялық жүйелердегі дисперстік фазаларды агрегациялау және кластерлеу үдерістерінің кең таралған үлгілері олардың тәжірибелік құндылығын төмендететін бірқатар кемшіліктерге ие.

Талдау белгілі модельдердің (Смолуховский және Беккер-Деринг теңдеулері) ең маңызды кемшіліктері жүйелерде өзара әрекеттесетін динамикалық кластерлік құрылымдар өз сипаттамаларын уақыт бойы өзгертетінін жеткіліксіз ескере отырып негізделгенін көрсетеді. Технологиялық процестердің жылдамдығы жоғары және алынатын дисперстік жүйелердің фракциялық құрамының біртектілігіне қойылатын талаптар жоғары болатын, наножүйелерде осы құбылыстарды есепке алу аса маңызды болады. Осы кезде жылдам өтетін үдерістерді тиімді бақылау қорлары шектелген болады. Сондықтан бақылау параметрлерін анықтайтын оңтайлы мәндерді дұрыс таңдау мен есептеу аса маңызды.

Диффузиялық параметрлер де, агрегациялаудың ішкі кинетикасының параметрлерінің әсері, яғни дисперстік фаза кластерлерінің агрегациялық белсенділігінің кластерлердің тіршілік ету уақытына, сондай-ақ олардың жіңішке құрылымына тәуелділіктері салыстырмалы болғанда, аралас кинетика жағдайларында уақыттың әр түрлі сатысында агрегациялау үдерістерінің кинетикасын ескеруге мүмкіндік беретін жаңа теориялық тәсілдер қажет.

Зерттеу заты дисперстік жүйелерде дисперстік кластерлерді агрегациялау және тығыз дисперсиялардың гидродинамика үдерістері болып табылады.

Жұмыстың мақсаты – химиялық аппараттарда дисперстік жүйелерді агрегациялау үдерістерін сипаттауға заманауи тәсілдерді сынап талдау және осының негізінде уақыт аралығында кластерлер құрылымының түрлену құбылысын есепке алуға мүмкіндік беретін, жаңа, физикалық негізделген

модельдерді ұсыну, сондай-ақ жоғары біртекті фракциялық құрамды тұрақтандырылған дисперстік жүйелер өндірісінің үдерістерін аңтайлы жобалау барысында қолданылатын кинетикалық және гидродинамикалық есептеу әдістерін жасауды іске асыру.

Қойылған мақсатқа сәйкес келесі **міндеттер** шешілді: - кластерлердің ішкі құрылымын, дисперстік орталардың әр түрлі концентрациялары жағдайларында әр түрлі сипаттағы уақыттарда олардың құрылымының түрленуін есепке алу тұрғысынан агрегациялау модельдерін сынап талдау; - жоғарыда аталған факторлардың агрегациялау үдерістерінің кинетикасына және дисперсияның фракциялық құрамына әсерін есептеуге арналған математикалық модельдерді жасау; - ұсынылып отырған модельдердің барабарлығын тексеру үшін тәжірибелік зерттеулерді жүргізу және аппараттың жұмыс көлемінде бақылау параметрлері мен дисперсияның келу уақытысының фракциялық құрамға әсерін зерттеу; - дисперсияның тұрақтандырылған фракциялық құрамын қамтамасыз ету үшін жұмысшы параметрлерді есептеу әдістерін жасау; - біртекті фракциялық құрамды қою дисперсияларды қалыптастыру мен технологиялық сұлбаның аппараттар тораптарында олардың өту модельдерін құру; - жұмыс көлемінде энергияның диссипациясын есепке ала отырып, дисперсияларды тиеу және тасымалдау үдерістерін есепке алу әдістері мен математикалық модельдерін жасау.

Зерттеудің ғылыми жаңалығы:

- дисперстік фазаның кластерлерінің агрегациялық белсенділігін сипаттау міндеті олардың реті мен диффузиялық кинетикаға емес, сондай-ақ кластерлер құрылымының түрленуі мен аппараттың жұмыс көлеміне олардың келу уақытын есепке ала отырып қойылған және физикалық түрде негізделген;

- реакторларда реакциялық қоспаның келу уақыты мен араластыру дәрежесін есепке алуға арналған белгілі модельдерге қарағанда, кластерлік агрегациялау жағдайында бөлшектердің ішкі құрылымының түрлену мәселесі агрегациялық белсенділікке айтарлықтай әсер ететіні көрсетілген;

- ішкі құрылымның белгіленген факторлары мен кластерлердің жасын есепке алатын тығыз полидисперсті жүйелерде кластерлік агрегациялау моделі жасалынды;

- жүргізілген тәжірибелердің нәтижесінде агрегациялау үдерісінің уақытының дисперсияның фракциялық құрамының үлестіру функциясына әсері дәлелденді және уақыттық факторды есепке алумен үлестіру функциясын есепке алуға арналған тәуелділіктер алынды;

- коагуляцияланатын дисперстік қоспалардың шөгу уақытын есептеуге арналған модельдер және қою дисперсияларды тиеу және тасымалдау үдерістерін басқарудың бақылау параметрлерін есептеуге арналған модель жасалынды.

Зерттеудің теориялық маңызы құрылымының уақытша түрленуін есепке алумен дисперстік жүйелерде кластерлерді агрегациялаудың ғылыми негізделген моделін, сондай-ақ энергияның көлемдік диссипациясын есепке алумен тығыз дисперстік жүйенің ағу моделін жасауға негізделген.

Тәжірибелік құндылығы. Тұрақтандырылған фракциялық құрамды камтамасыз ету мақсатында агрегациялау үдерісінің бақылау параметрлерін бағалау әдістемесі жасалынды; ньютондық емес реологиясымен дисперстік жүйелерді тиеу мен тасымалдауға кеткен энергетикалық шығындарды есептеу әдістемесі ұсынылған; импульстік тасымалдау мен тиеу тәртібін оңтайландыруға арналған бақылау параметрлерін есептеу әдістемесі ұсынылған. Алынған нәтижелер шөгінділер мен қождарды тиеу және тасымалдауды есепке алу әдістемесі түрінде «ҚазҒЗИХимжоба» ЖШС-не, сондай-ақ М.Әуезов атындағы Оңтүстік Қазақстан мемлекеттік университетінің оқу үдерісіне де енгізілген.

Зерттеу тақырыбы бойынша жарияланымдар. Диссертация тақырыбы бойынша 12 ғылыми еңбек жарияланған, соның ішінде 3 мақала ҚР БҒМ білім және ғылым саласындағы бақылау Комитетімен ұсынылған журналдарда, 2 мақала SKOPUS ғылыми журналдардың халықаралық базасына кіретін және ҚР БҒМ талаптарына сәйкес CiteScore бойынша 25-тен жоғары процентильге ие басылымдарда және 7 мақала халықаралық конференция еңбектерінде жарияланған. Мақалалардың мазмұны диссертацияның негізгі мазмұнын қамтиды.

Кіріспеде шешіліп жатқан ғылыми мәселенің қазіргі жағдайының бағасы, тақырыпты жасауға арналған бастапқы мәліметтер мен негіздемелер, ғылыми-зерттеу жұмысын жүргізуге қажеттілігін негіздеу, жұмыстың жоспарланған ғылыми-техникалық деңгейі туралы мәліметтер және диссертацияның метрологиялық камтамасыз етілуі, тақырыптың өзектілігі мен жаңалығы, осы жұмыстың басқа ғылыми-зерттеу жұмыстармен байланысы, зерттеу мақсаты, объектісі мен заты, міндеті, әдістемелік базасы, қорғауға шығарылатын ережелер, тәжірибелік құндылығы және тәжірибелік нәтижелердің апробациясы берілген.

Жұмыстың бірінші бөлімінде фракциялық құрамды қалыптастырудың кинетикасы тұрғысынан дисперстік жүйелерде агрегация үдерістерін сипаттау мен модельдеу мәселелерінің әдеби шолуына, сондай-ақ аспектілердің осы сұрақтарымен байланысты тәжірибелік құндылығына арналған. Жүргізілген талдаудың негізінде зерттеу міндеттері қалыптасқан.

Жұмыстың екінші бөлімі дисперстік жүйелердің қайтымсыз агрегациялаудың жаңа математикалық модельдерін жасауға арналған. Дисперстік фазаның кластерлерінің құрылымының түрленуін есепке алатын агрегациялау моделі жасалынды және релаксация уақытын есепке ала отырып, түрлендірілген кинетикалық теңдеуді шығаруға тұжырымдамалық алғы шарттар құрылды және тиісті түрлендірілген интегралдық-дифференциалдық теңдеу алынды:

$$\frac{dC_I}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{J=1}^{I-1} \int_0^t \int_0^{t_1} N_{J,I-J} C_J(t_1) C_{I-J}(t_2) dt_1 dt_2 - \sum_{J=1}^{\infty} \int_0^t \int_0^{t_1} N_{I,J} C_I(t_1) C_J(t_2) dt_1 dt_2 \quad (2.1)$$

Смолуховскийдің агрегациялау теңдеуінде жылдамдық ядроларын масштабтау аспектілері: кластерлердің ішкі құрылымының ішкі түрлену рөлі

мен түзілуінің алдында олардың агрегациялау белсенділігінің өзгерісі теориялық түрде сипатталған. Осы тұжырымдамаға сәйкес екі кинетикалық теңдеулер жүйесі түрінде агрегациялаудың кинетикалық моделін беру ұсынылады, мұнда агрегациялау ядросы тиісінше ішкі және сыртқы кинематикалық теңдеулермен өрнектелетін ішкі және сыртқы факторлардың туындылары түрінде жазылады.

$$N_{i,j} = N_{i,j}^{(in)} \cdot N_{i,j}^{(out)} \quad (2.2)$$

Бірінші фактор уақыт бойы кластер құрылымының түрленуінің әсерін, екіншісі уақыт бойы әр түрлі реттегі кластерлердің концентрациясының өзгерісін сипаттайды.

Фракциялық құрамды тұрақтандырудың арнайы факторы \tilde{W} енгізілген және дисперстік ортаның физикалық сипаттамалары негізінде оны есептеу жолы негізделген:

$$\tilde{W} = \frac{C_{2i}}{C_i} = \frac{(3/2)^\beta}{1 + (zi)^\beta} \quad (2.3)$$

мұндағы z және β параметрлерін ортаның физикалық-химиялық сипаттамаларының кестелік мәндері бойынша есептеу үшін диссертацияда тиісті қатынастар ұсынылған.

Жасалған модельдер дисперстік фазада кластерлерге агрегацияланатын күрделі құрылымдық түрленулермен дисперстік жүйелерде динамикалық үдерістерді сипаттауға мүмкіндік береді.

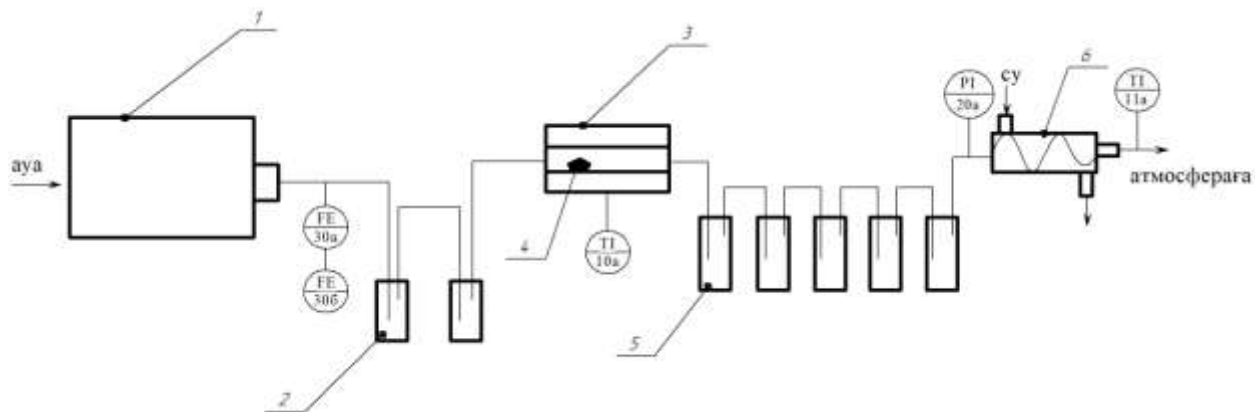
Жұмыстың үшінші бөлімі десублимация үдерістерінде берілген тар фракциялық құрамды дисперсиялардың түзілу тәртіптерін тәжірибелік зерттеуге арналған. Зерттеу объектісі кремний диоксидінің SiO_2 буларын десублимациялау үдерісі болды.

Тәжірибелік зерттеулердің негізгі мақсаты – десублимация үдерісінің әр түрлі уақыттық сатыларында дисперсияның фракциялық құрамының түрленуін зерттеу.

Зерттеу қондырғысы екі негізгі торапты құрады. Бірінші торап – кремний диоксидінің қаныққан буын алу торабы. Осы сатының технологиялық үдерісі Қаратау жоғары кремнийлі фосфориттерін байытудың белгілі тәсіліне негізделді және бұрын десублимациялау бойынша әр түрлі тәжірибелерде сынақтан өткізген болатынбыз. Екінші торап – Дрексель тізбекті колбалары жүйесінде буларды десублимациялау торабы.

Барлығы бес дайындалған сынаманың негізінде 33 айналулар жасалынды және талданды. Әрбір жағдайда 2 мкм қадамымен торды салумен микрофотография өрісінде бөлшектер санын санай отырып, өлшемдері бойынша бөлшектердің үлестіру функциясын анықтадық. Десублиматтың электрондық-микроскопиялық зерттеулерін жүргізуге арналған қондырғы ретінде JSM-6490LV(РЭМ) ерітінділік электрондық микроскоп қолданылды.

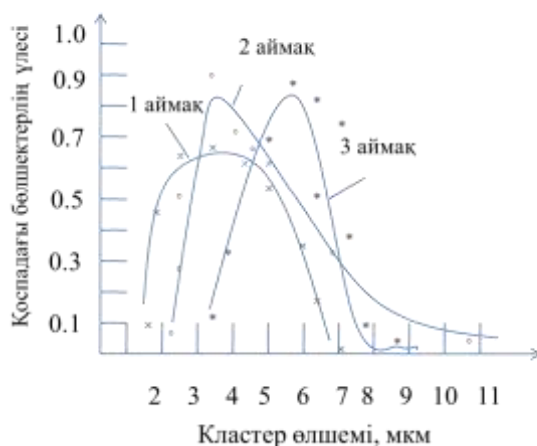
Қондырғының сұлбасы 1-суретте көрсетілген.



1 - компрессор, 2 – кептіру торабы, 3 - электр пеші, 4 – айдалатын үлгі, 5 - десублимация және ұстау жүйесі, 6- жылуалмастырғыш

Сурет 1 – Тәжірибелік қондырғының сұлбасы

2-суретте тәжірибе нәтижелерін статистикалық өңдеудің кейбір нәтижелері келтірілген.



1 аймақ × – Дрексельдің 1-ші және 2-ші колбасынан өтудің орташа кезеңі;
 2 аймақ ° – Дрексельдің 3-ші және 4-ші колбасынан өтудің орташа кезеңі;
 3 аймақ * – 5-ші колбаны өту кезеңі.

Сурет 2 – Колбалар жүйесіне кірерде 450°C температурада әр түрлі уақыттық аймақтарда десублимат дисперсиясының кластерлерінің өлшемдерінің таралу тығыздығы, мкм.

Тәжірибелік зерттеулердің нәтижелері біріншілік нуклеаттардың жылдам түзілу сатысы және агрегаттардың баяу диффузиялық-бақылау өсімінің келесі сатысының болуы туралы теориялық қорытындысын дәлелдеді. Үлкен бастапқы қанығу болғанда, дисперстік фазаның эмбриондарының (мономерлердің) көп саны аппарат көлемінің бірлігіне жылдам түзілген кезде көпбөлшекті соқтығысулардың үлесі аса үлкен болады. Содан соң қанығудың бірден төмендеуі жүреді және агрегациялау үдерісі газ фазасында диффузиялық қарсыласумен шектеле бастайды. Ол агрегациялау қарқындылығының бірден төмендеуіне әкеледі және нәтижесінде жеткілікті біртекті фракциялық құрамды дисперсия алынады.

Тәжірибелік зерттеулердің негізінде сфералық коэффициенттері мен өлшемдері бойынша кластерлердің таралу тығыздығының қисығын есептеуге арналған эмпирикалық тәуелділіктер келесі түрде алынды:

$$f(i, T) = A \exp(-C_1 iT / T_*) - B \exp(-C_2 iT / T^*) \quad (3.1)$$

Уақыттық аймақтар бойынша (3.1) формуланың коэффициенттері: 1-ші аймақ үшін $A = 1.52$; $B = 0.62$; $C_1 = 0.54$; $C_2 = 0.74$; 2-ші аймақ үшін $A = 2.38$; $B = 0.80$; $C_1 = 0.66$; $C_2 = 0.62$; 3-ші аймақ үшін $A = 2.60$; $B = 0.72$; $C_1 = 0.81$; $C_2 = 0.52$; T_* - аймақтың сипаттық уақыты.

Жұмыстың төртінші бөлімі модельдерді жасауға және дисперстік жүйелерді тиеу мен тасымалдау тәртіптерін сипаттауға арналған. Технологиялық аппараттардың тораптарында дисперсті жүйелерді тиеу мен тасымалдау тәртіптері мен шөгінділердің түзілу құбылысы теориялық түрде сипатталады. Әр түрлі фракциялардың бөлшектерінің өзара агрегациялау жағдайларында бидисперсті суспензияның гравитациялық шөгу моделі; қою полидисперсті суспензиялар ағындарының параметрлерін есептеуге арналған модель; дисперстік материалдарды жүктелуін басқару моделі жасалынды. Модельдеу нәтижесінде дисперсияның әр түрлі фракцияларынан шөгінді жинақталу қисығын, бастапқы кластерлердің концентрацияларының өзгеру қисығын салу әдістемесі ұсынылған. Тығыз жүзінділер мен шөгінділердің ағуын сипаттау тапсырмасына амал жасалынған, ол қатты қабырғаның жанындағы қою суспензияның ағу жылдамдығы мен резервуардан ағу жылдамдығын есептеуге мүмкіндік береді.

$$V_f = -\gamma(H_0 - H) + \sqrt{\gamma^2(H_0 - H)^2 + 2gH} \quad (4.1)$$

Жаңа модель тәжірибелік бақылаулар мен жақсы сапалы келісімді көрсетеді, дегенмен нақты физикалық-химиялық жүйелерге қолданылатын бақылау параметрлерінің қатарын анықтау үшін тәжірибелік мәліметтер жиынын анағұрлым толық талдауды талап етеді.

Қорытындыда диссертациялық зерттеу нәтижелері бойынша қысқаша қорытынды берілген, қойылған міндеттер шешімінің толықтылығының бағасы келтірілген, нәтижелерді нақты қолдану бойынша бастапқы мәліметтер мен ұсыныстар жасалған, берілген салада үздік жетістіктермен салыстырғанда орындалған жұмыс деңгейі мен енгізудің техникалық-экономикалық тиімділігінің бағасы берілген.

Шартты белгілеулер: C_i - дисперстік фазада I ретті кластердің көлемдік концентрациялары, $1/m^3$; g - еркін құлау үдеуі, m/c^2 ; H - резервуардағы дисперстік орта қабатының биіктігі, m ; $N_{i,j}$ - I, J ретті кластерлердің агрегациялау ядролары, m^3/c ; t - время, c ; V_f - ағу жылдамдығы, m/c ; γ - ағу коэффициенті, $1/c$.