

## ОСОБЕННОСТИ СИНТЕЗА УГЛЕРОДНЫХ НАНОМАТЕРИАЛОВ В АППАРАТЕ С ИНДУКЦИОННЫМ НАГРЕВОМ КАТАЛИЗАТОРА

С.В. Мищенко<sup>1</sup>, А.В. Рухов<sup>2</sup>, А.Г. Ткачев<sup>2</sup>, Е.Н. Туголуков<sup>2</sup>

*Кафедры: «Автоматизированные системы и приборы» (1),  
«Техника и технологии машиностроительных производств» (2),  
ГОУ ВПО «ТГТУ»*

**Ключевые слова и фразы:** индукционный нагрев; промышленный синтез углеродного наноматериала; углеродная нанотехнология.

**Аннотация:** Работа посвящена синтезу углеродных наноматериалов в аппаратах с индукционным нагревом катализатора. Предложен способ осуществления процесса получения углеродных наноматериалов методом газофазного осаждения на поверхности металлического катализатора, перегретого индукционными токами. Представлены результаты экспериментального исследования возможности синтеза углеродных наноматериалов предложенным способом.

---

В настоящее время наиболее перспективным для промышленной реализации является синтез углеродных наноматериалов (УНМ) методом газофазного осаждения углерода на металлическом катализаторе (CVD-метод) [1].

В опытно-промышленном реакторе синтеза УНМ (ООО «Нанотехцентр», г. Тамбов) требуемый температурный режим достигается обогревом внутреннего пространства реактора, заполненного углеродсодержащими газами, что приводит к их объемному термическому пиролизу и образованию аморфного углерода.

Локальный перегрев катализатора относительно температуры углеродсодержащих газов позволит снизить долю аморфного углерода и существенно уменьшить термические нагрузки на конструкционные элементы реактора.

Такой режим работы оборудования синтеза УНМ может быть достигнут нагревом частиц металлического катализатора в индукционном поле. Это позволит также управлять качественными характеристиками синтезируемых УНМ и осуществлять процесс на подложках, не допускающих значительного нагрева.

С целью разработки промышленного оборудования, реализующего данный способ синтеза УНМ, выполнен ряд исследовательских работ, позволивших выявить:

- 1) способы организации процесса синтеза (условия нагрева, способы подачи исходной смеси, катализатора и др.);
- 2) режимные характеристики процесса синтеза (концентрации, температуры, расходы и др.);
- 3) кинетические характеристики сопутствующих процессов (теплообмен, химические реакции и др.);
- 4) основные элементы технологической схемы синтеза УНМ методом газофазного осаждения на металлическом катализаторе при использовании индукционного обогрева.

Индукционный способ подвода тепла исключает нагрев неэлектропроводных частиц и конструктивных элементов реактора вне зоны действия индуктора. Но, поскольку энергетическая эффективность индукционного нагрева мала, рациональнее первоначально осуществлять нагрев газовой смеси до температуры, не

превышающей температуру термического пиролиза. Каталитический пиролиз будет протекать только на частицах металлического катализатора, нагретых индукционными токами.

Для подтверждения возможности проведения синтеза УНМ на металлическом катализаторе в поле индуктора была разработана экспериментальная установка (рис. 1) на базе вертикального реактора для исследования кинетики процесса [2].

В экспериментальных работах использовался катализатор NiO-MgO 80...20 % [3], углеродсодержащий газ – пропан-бутановая смесь ГОСТ 20448–90.

Экспериментальная установка состоит из корпуса 1, изготовленного из нержавеющей стали, в который по трубопроводу 2 подается исходная смесь (на этапе пуска/остановки используется аргон, поступающий из баллона 7 через регулятор расхода 5 и расходомер 3; для рабочего режима используется углеводородная смесь, поступающая из баллона 8 через регулятор расхода 6 и расходомер 4). Резистивным нагревателем 9 через стенку корпуса происходит нагрев исходной смеси до температуры ниже начала пиролиза (~ 430 °С). Регистрация и контроль температуры осуществляется микропроцессорным регулятором 11 с подключенной к нему термопарой 10, градуировка ТХА. Через газораспределительную решетку 12 исходная смесь подается в реакционную зону. В реакционной зоне установлена керамическая подложка с расположенным на ней катализатором, помещенная в индуктор 14. Индуктор подключен к генератору переменного напряжения 15.

Конфигурации и расположение индуктора выбиралась таким образом, чтобы исключить индукционный нагрев металлических конструктивных элементов установки.

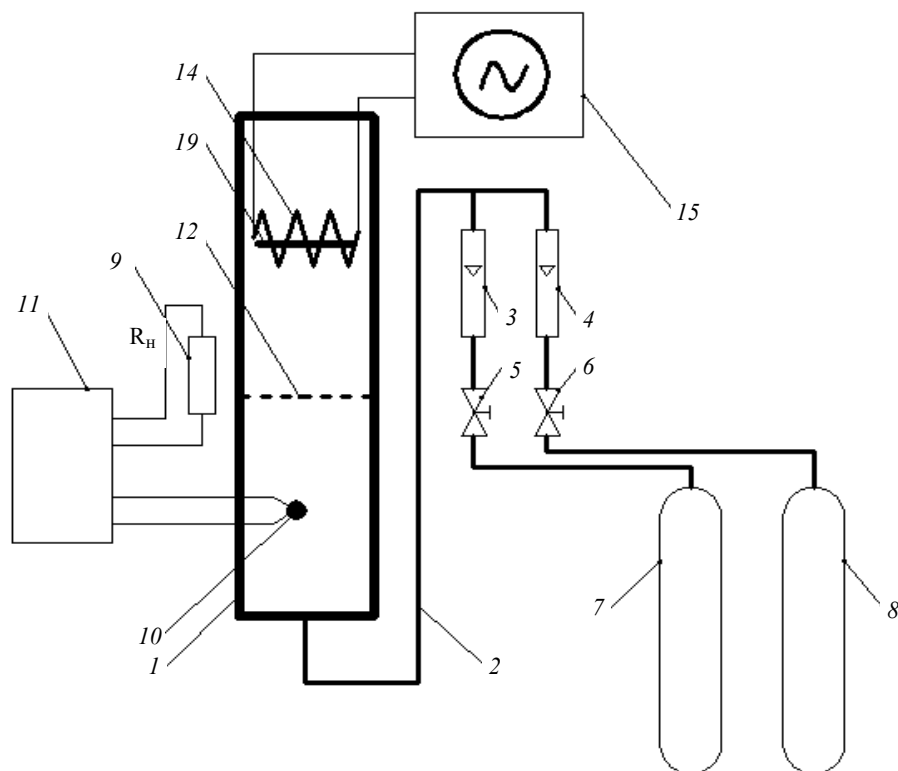


Рис. 1. Экспериментальная установка синтеза УНМ в поле индуктора

Из литературы [4] известно, что переменные электромагнитные поля вызывают геометрические искажения синтезируемых УНМ, что ухудшает их качество. В связи с этим, использование промышленного двухполярного генератора индукционного нагрева нецелесообразно. Для проведения исследований был разработан генератор, лишенный данных недостатков.

Были выполнены экспериментальные работы по синтезу УНМ при индукционном нагреве катализатора с предварительным подогревом исходных газов. По заключению экспертов, проводивших исследование полученных образцов методами сканирующей электронной микроскопии, полученные УНМ относятся к классу пакетированных многослойных углеродных нанотрубок. Наблюдаются плотно переплетенные клубки пакетированных многослойных углеродных нанотрубок диаметром 25...30 нм. Процентное содержание аморфного углерода не превышает 5%. Изображения полученного УНМ приведены на рис. 2.

Используя методы конечно-элементного анализа, реализованного в интерактивном пакете Elcut 5.5, разработана математическая модель стационарного электромагнитного поля внутри индуктора.

Приняты следующие допущения:

- индуктор выполнен в виде соленоида и имеет конечное количество витков;
- слой катализатора рассматривается как единая система с интегральными значениями определяющих параметров;
- электромагнитное поле за пределом корпуса реактора отсутствует.

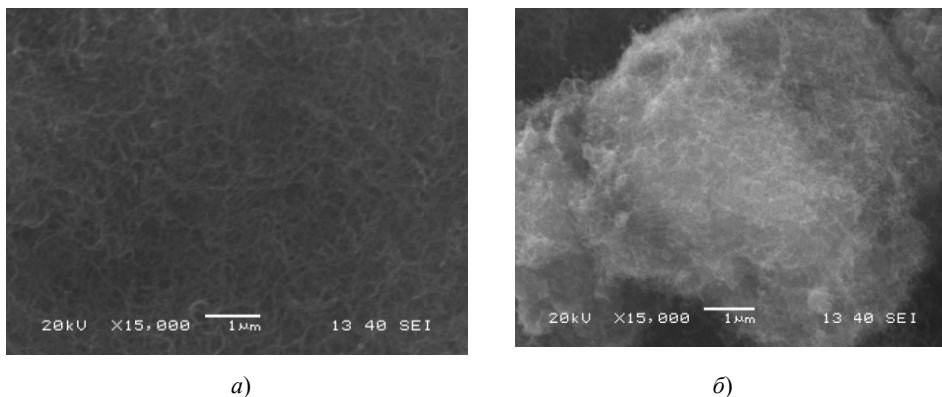
Результат расчета поля значений электромагнитной индукции представлен на рис. 3.

Знание поля значений электромагнитной индукции позволило выполнить расчет полей плотности тока и мощности тепловыделения (рис. 4).

Из рис. 4 видно, что вблизи источника поля (индуктора) образуется область повышенного тепловыделения. В большей части слоя катализатора мощность тепловыделений равномерна, а ее среднее значение составляет  $7,5 \cdot 10^4$  Вт/м<sup>3</sup>.

Выполненные экспериментальные исследования подтвердили возможность осуществления синтеза УНМ при температурах исходного углеродсодержащего газа ниже температуры каталитического пиролиза на поверхности металлического катализатора, перегретого полем индуктора.

На представленный способ синтеза УНМ получено решение о выдаче патента на изобретение «Способ получения волокнистых углеродных структур каталитическим пиролизом», заявка № 2007128687/04.



**Рис. 2. Результаты исследования УНМ методами сканирующей электронной микроскопии: а – отдельные волокна УНМ; б – клубки волокон УНМ**

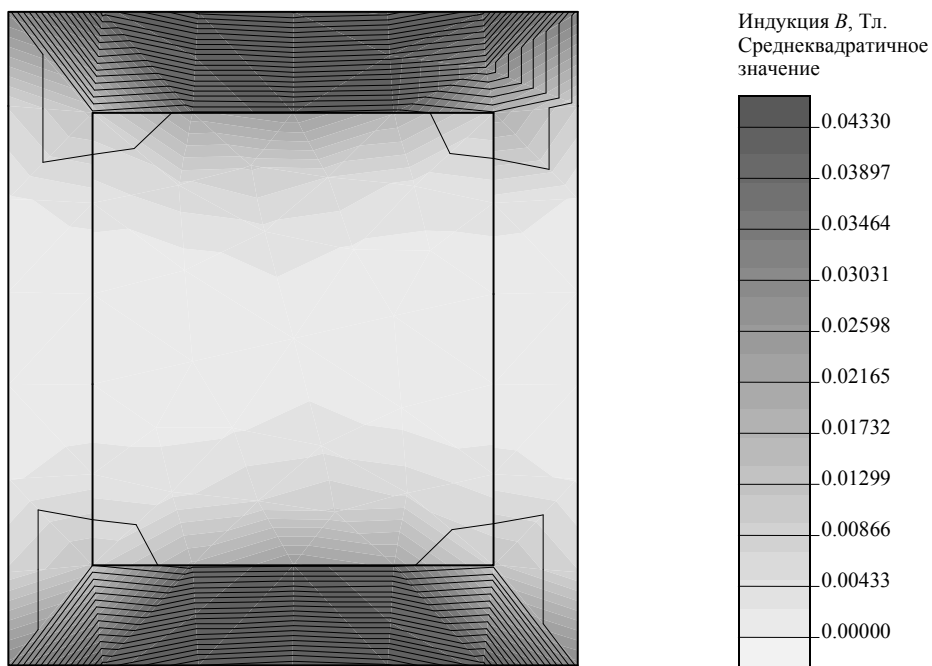


Рис. 3. Расчетное поле электромагнитной индукции

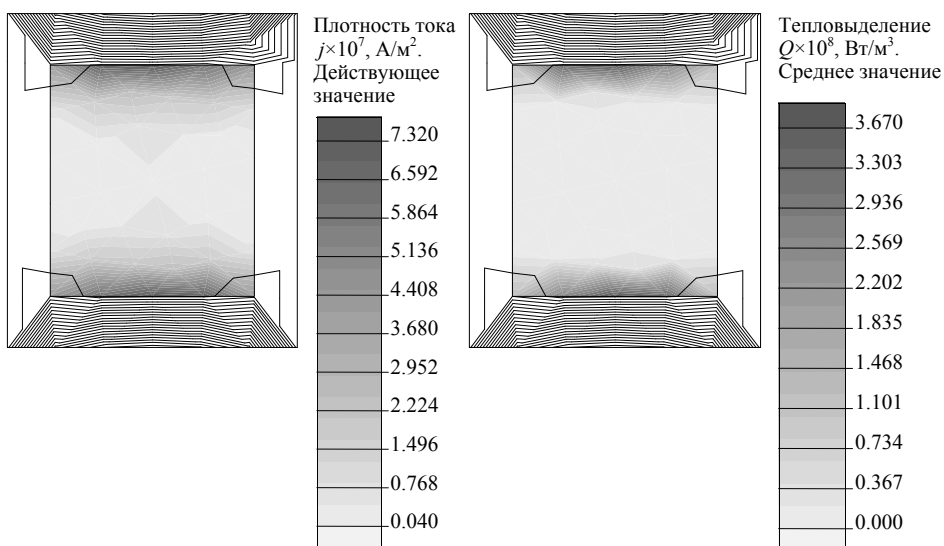


Рис. 4. Поля плотности тока и мощности тепловыделения

Полученные значения режимных характеристик используются в настоящее время при проектировании нового высокоэффективного промышленного реакционного оборудования синтеза УНМ с индукционным обогревом катализатора.

#### Список литературы

1. Ткачев, А.Г. Каталитический синтез углеродных нанотрубок из газофазных продуктов пиролиза углеводородов / А.Г. Ткачев, С.В. Мищенко, В.И. Коновалов // Рос. нанотехнологии. – 2007. – Т. 2, № 7–8. – С. 100–108.

2. Получение углеродных наноструктурных материалов методом каталитического пиролиза углеводородов / С.В. Блинов [и др.] // Индустрия наносистем и материалы : материалы конф. / Моск. гос. ин-т электрон. техники. – М., 2006. – С. 44–47.

3. Ткачев, А.Г. Определение состава и метода получения катализаторов синтеза углеродных наноструктурных материалов / А.Г. Ткачев, С.В. Рыбкин // Вопр. соврем. науки и практики. Ун-т им. В.И. Вернадского. – 2007. – Т. 2, № 4(10). – С. 166–174.

4. Vijay, K. Varadan and Jining Xie Large-Scale Synthesis of Multi-Walled Carbon Nanotubes by Microwave CVD / K. Vijay // Smart Mater. Struct. – 2002. – Vol. 11, № 4. – P. 610–616.

---

### **Specific Features of Synthesis of Carbon Nano-Materials in the Unit with Inductive Heating of Catalyst**

S.V. Mishchenko<sup>1</sup>, A.V. Rukhov<sup>2</sup>, A.G. Tkachev<sup>2</sup>, E.N. Tugolukov<sup>2</sup>

*Departments: “Automated Systems and Devices” (1),  
“Engineering Equipment and Technologies” (2), TSTU*

**Key words and phrases:** carbon nano-technology; inductive heating; industrial synthesis of carbon nano-material.

**Abstract:** The paper studies the synthesis of carbon nano-materials in the units with inductive heating of catalyst. The way of implementation of the process of production of carbon nano-materials by method of gas-phase precipitation on the surface of metal catalyst heated by inductive currents is proposed. The results of experimental research in the possibility of synthesis of carbon nano-materials by the given method are presented.

---

### **Besonderheiten der Synthese kohlenstofflichen Nanomaterialien im Apparat mit der Induktionserwärmung des Katalysators**

**Zusammenfassung:** Die Arbeit ist der Synthese der kohlenstofflichen Nanomaterialien in den Apparaten mit der Induktionserwärmung des Katalysators gewidmet. Es ist die Weise der Verwirklichung des Prozesses des Erhaltens der kohlenstofflichen Nanomaterialien von der Methode des Gasphasenfällens auf der Oberfläche des metallischen Katalysators, der von den Induktionsströmen überhitzt ist, angeboten. Es sind die Ergebnisse der experimentalen Forschung der Möglichkeit der Synthese der kohlenstofflichen Nanomaterialien von der angebotenen Weise vorgelegt.

---

### **Particularités de la synthèse des nanomatériaux hydrogènes dans un appareil avec un chauffage inductif du cataliseur**

**Résumé:** L'article est consacré à la synthèse des nanomatériaux hydrogènes dans les appareils avec un chauffage inductif du cataliseur. Est proposé le moyen de la réalisation des nanomatériaux hydrogènes par la méthode de la précipitation par gaz et par phase sur la surface du cataliseur chauffé par les courants d'induction. Sont présentés les résultats de l'étude de la possibilité de la synthèse des nanomatériaux hydrogènes par le moyen proposé.