

ИССЛЕДОВАНИЕ ФИЛЬТРАЦИОННЫХ СВОЙСТВ КЕРАМИЧЕСКИХ ПЕЛЛЕТ, ИЗГОТОВЛЕННЫХ 3D-ПЕЧАТЬЮ, МЕТОДАМИ CFD И КОМПЬЮТЕРНОЙ ТОМОГРАФИИ

© 2023 г. В. С. Дорохов^{1,*}, О. Л. Овсиенко¹, С. С. Чугунов²,
М. В. Рогозина¹, Н. А. Аникеев¹, П. А. Никульшин¹

¹ Акционерное общество «Всероссийский научно-исследовательский институт по переработке нефти»
(АО «ВНИИ НП»), Москва, 111116 Россия

² Автономная некоммерческая образовательная организация высшего образования
«Сколковский институт науки и технологий», Москва, 143025 Россия

*E-mail: dorokhovvs@vniinp.rosneft.ru

Поступила в редакцию 27 декабря 2022 г.

После доработки 27 марта 2023 г.

Принята к публикации 12 мая 2023 г.

Описывается использование методов компьютерного моделирования и аддитивных технологий для получения материалов защитного слоя с новым дизайном фильтрационных каналов. Компьютерное моделирование структур каналов различной геометрии методами вычислительной гидродинамики (Computational Fluid Dynamics, CFD) позволило определить возможные локации улавливания твердых пылевидных частиц в пеллетах керамических фильтров. Пеллеты фильтров были изготовлены по технологии лазерной стереолитографии из керамического материала. Проведены фильтрационные испытания напечатанных образцов. Исследование структур каналов пеллет методом CFD для определения потенциальных локаций фильтрации и последующее сопоставление полученных результатов моделирования с данными рентгеновской томографии напечатанных пеллет после их испытаний, позволило оценить эффективность компьютерного моделирования CFD для проектирования материалов фильтров. Полученные данные планируется использовать для разработки инновационных защитных материалов с фильтрующими свойствами для конкретных процессов нефтегазопереработки с учетом промышленных условий их реализации.

Ключевые слова: аддитивные технологии, керамическая 3D-печать, лазерная стереолитография, численное моделирование, вычислительная гидродинамика, рентгеновская компьютерная томография, материалы защитного слоя, фильтрация

DOI: 10.31857/S0028242123020077, **EDN:** НКЕJCB

Основное назначение материалов защитного слоя в промышленных каталитических реакторах – улавливание частиц твердых примесей технологических потоков. Использование материалов защитного слоя с улучшенными функциональными свойствами в значительной степени решает проблему частой замены катализаторов в химических реакторах. Среди основных требований к эффективным высококачественным защитным материалам мож-

но выделить их способность обеспечивать в течение длительного времени высокую степень очистки технологических потоков и низкое собственное гидродинамическое сопротивление [1–5]. Разработка новых защитных материалов, оптимально сочетающих развитую сеть внутренних каналов, низкое гидродинамическое сопротивление и высокую механическую прочность – актуальная задача в нефтехимической промышленности.

Применение аддитивных технологий позволяет получать сложную геометрию фильтров, ранее недоступную для практической реализации. Возможность изготовления сложных структур с заранее определенной геометрией каналов вместо хаотичной структуры существующих керамических фильтров открывает широкие перспективы целенаправленного инженерного дизайна для достижения требуемых эксплуатационных характеристик фильтрационных систем [6–11].

С целью апробации нового процесса производства защитных материалов, подтверждения применимости свободного программного обеспечения для проектирования 3D-моделей фильтров и определения перспективной геометрии каналов фильтров нами были разработаны 3D-модели фильтров сложной геометрии, которые были напечатаны из керамического материала на 3D-принтере для экспериментальной оценки их функциональных свойств [12, 13]. На этапе моделирования различных вариантов геометрии фильтров нами были выполнены расчеты перепада давления и траектории движения потока воздуха через каналы, используя методы вычислительной гидродинамики (CFD).

В данной работе представлено сопоставление результатов расчетов CFD моделей пеллет и фильтрационных испытаний аддитивно изготовленных фильтров.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Проектирование 3D-моделей и расчеты методом вычислительной гидродинамики

Для проектирования компьютерных трехмерных моделей структур каналов и пеллет фильтров использовали программное обеспечение (ПО) FreeCAD 0.19.2 [14]. Общее описание структур каналов, выбранных для моделирования и 3D-печати, представлено в табл. 1. Все изготовленные пеллеты имели цилиндрическую форму, диаметр 50 мм, высоту 20 мм и долю свободного объема более 50%. Размеры пеллет были выбраны, исходя из размеров имеющихся коммерческих образцов материалов защитного слоя.

Для выполнения расчетов CFD была использована платформа blueCFD-Core-2020-1, основанная на свободном проекте OpenFoam и отличающаяся

пользовательской доступностью [15, 16]. Генерацию стартовых файлов и запуск расчетов проводили через надстройку CFDof для FreeCAD. Для каждой из моделей была подготовлена репрезентативная часть диаметром 20 мм и высотой 20 мм, которая затем вычиталась из центральной части цилиндра диаметром 20 мм и высотой 60 мм. Для генерации объемных сеток использовали программу Gmsh [17] с заданием размера элемента сетки 0.5 мм. Моделировали также сжимаемую воздушную среду. Одно из оснований получившейся фигуры задавали как вход потока воздуха с массовым расходом 0.0023 кг/с, другое основание – как открытое в атмосферу с давлением 100 кПа. Температура среды и материала стенок моделируемого фильтра, а также температура подаваемого газа, в начальный момент времени составляли 290 К. Эффект торможения газа в пристеночном слое не учитывали. Результаты расчетов визуализировали и обрабатывали по ПО ParaView 5.6.2 [18].

3D-печать и фильтрационные испытания

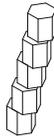
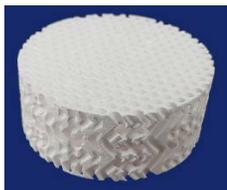
Печать экспериментальных пеллет выполнена на стереолитографическом принтере Ceramaker 900 (3DCeram Sinto, Франция). Для печати использовали керамическую пасту от разработчика оборудования на основе порошка $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ с комплексом органических связующих. После удаления излишков связующего керамические образцы отжигали и спекали с выдержкой при температуре 1700°C.

Фильтрующую способность образцов проверяли на испытательном стенде при подаче 30 г смеси твердых частиц SiC, SiO₂ и сажевой пыли в массовом соотношении 1.0 : 1.0 : 0.3 с размером частиц от 50 до 500 мкм в поток воздуха, идущего с массовым расходом 50 кг/ч. Более подробно процедура изготовления и испытания образцов описана в [13].

Томография

Визуализация внутреннего пространства опытных образцов после испытаний была проведена с помощью рентгеновского компьютерного томографа GE v|tome|x L240. Для получения трехмерной цифровой модели объектов во время сканирования для каждого объекта были получены 3600 теневых проекций, что соответствовало угловому шагу сканирования 0.10°. На основе полученных теневых

Таблица 1. Общее описание опытных образцов пеллет

Образец	Описание модели каналов образца	Общий вид каналов	Общий вид пеллет
Модель 1	Многослойные гексагональные соты; каждый слой смещается относительно других в горизонтальной плоскости		
Модель 2	Синусоидные каналы с круглым сечением. Система дополнена горизонтальными каналами диаметром 3 мм		
Модель 3	Зигзагообразные каналы с круглым сечением. Система дополнена горизонтальными каналами диаметром 3 мм		
Модель 4	Спиральные каналы, закрученные по три вокруг общей оси. Система дополнена горизонтальными каналами диаметром 3 мм		
Модель 5	Массив тетраэдров		

проекций проводили восстановление трехмерной плотностной цифровой модели сканируемого объекта при помощи встроенного в компьютерный томограф программного обеспечения.

Обработку трехмерных плотностных моделей проводили в программном комплексе Avizo v9.0. В процессе обработки модели очищали от шумов и артефактов сканирования при помощи фильтров. Для выделения наборов материалов в виде бинарных моделей проводили сегментацию моделей методом watershed. Для коррекции артефактов сегментации в бинарных моделях применяли

морфологические операторы, после чего, бинарные модели объединяли в многоматериальную сегментированную компьютерную 3D-модель, где на уровне локальных объемов и двумерных срезов выявляли локации, содержащие твердые частицы, захваченные из потока.

Определение типичных локаций захвата твердых частиц в образцах выполнено при помощи послойного анализа сечений в плоскостях XY и XZ , а также с использованием специальной цветовой схемы «Physics» программного продукта Avizo.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Для каждой из пяти геометрий каналов методом CFD была выполнена оценка аэродинамических свойств. Моделирование течения газа сквозь структуры каналов позволило выявить участки топологии, вносящие наибольший вклад в рост перепада давления, а также получить расчетные значения перепада давления для сопоставления с экспериментальными данными. В результате проведенной оценочно-расчетной работы были построены карты значений давления при течении воздуха через каналы для всех типов исследованных моделей фильтров (рис. 1).

В общем случае было выявлено, что фильтрационные процессы инициализируются на участках внутренней структуры фильтров, где ярко выражены: а) интенсивное торможение газового потока; б) завихрение газового потока; в) прижатие потоком газа твердых частиц к стенкам фильтра [19]. В силу существенного отличия геометрии внутренних каналов между моделями указанные факторы в разной степени проявили себя в различных типах исследованных фильтров,

Модель 1 представляет собой сотовые многослойные структуры с гексагональным сечением каналов. Гексагональные ячейки формируют горизонтальный слой заданной высоты. Для создания фильтра несколько подобных слоев объединены в вертикальном направлении и смещены относительно друг друга. Смещение слоев относительно друг друга небольшое, поэтому большая часть потока воздуха способна проходить структуру насквозь без значительного сопротивления (рис. 1а). В местах смещения слоев образуются небольшие препятствия течению потока и области, где давление снижается, а скорость потока возрастает. Для модели 1 давление изменяется ступенчато по высоте. Можно предположить, что твердые частицы должны осаждаться, в первую очередь, на уровнях смещения слоев. Недостатком данной модели является то, что нижний слой сот (нижние 4 мм по высоте) поток проходит быстро и беспрепятственно, и он, вероятно, не будет задействован в процессе фильтрации.

Воздушный поток в синусоидных каналах *модели 2* тормозится сильнее, чем в модели 1 (рис. 1б). Возле каждого колена синусоиды давление локально снижается и поток воздуха завихряет-

ся, дополнительное торможение и перемешивание потока газа обеспечивают горизонтальные каналы, введенные в топологию модели.

Зигзагообразные каналы *модели 3* имеют более резкие изгибы, чем в *модели 2*, поэтому расчетный перепад давления получился значительно выше (рис. 1в). Согласно расчетам CFD, скорость потока по всей высоте канала остается довольно высокой, но, как в случае с моделью 2, горизонтальные каналы затормаживают и перемешивают газ. В процессе фильтрации частицы пыли склонны оседать в углах зигзагов и в горизонтальных каналах.

Для спиральной *модели 4* (рис. 1г) было получено самое высокое значение перепада давления. Большее количество горизонтальных каналов, чем для моделей 2 и 3, было использовано для лучшего распределения потока и возможного отсева твердых частиц, но, в результате, большее количество изгибов геометрии привело к сильному торможению потока.

В *модели 5* (рис. 1д) большое количество угловых элементов в структуре каналов определяет ступенчатую природу изменения давления. Можно выделить области стыков и зоны вдоль горизонтальных граней тетраэдров, где способны скапливаться твердые пылевидные частицы.

Сопоставление расчетных и измеренных перепадов давления для пеллет, полученных 3D-печатью, представлены на рис. 2. Общие тренды изменения перепада давления при переходе от расчетных моделей к экспериментальным измерениям сохраняются, что подтверждает применимость методов CFD для моделирования новых геометрий фильтров.

Компьютерная томография модели 1 после испытаний показала наличие некоторого количества твердых частиц в местах ступенчатого смещения (рис. 3а). Если в месте смещения слоев канал забивался твердыми частицами, пыль начинала заполнять объем этого канала. В образце также присутствуют мелкодисперсные твердые частицы, осевшие на поверхности стенок каналов. Больше осевших частиц обнаруживается в верхней части пеллеты.

По результатам томографии видно, что на стенках изгибов модели 2 обнаруживаются твердые пылевые частицы (рис. 3б). Один из каналов пеллеты,

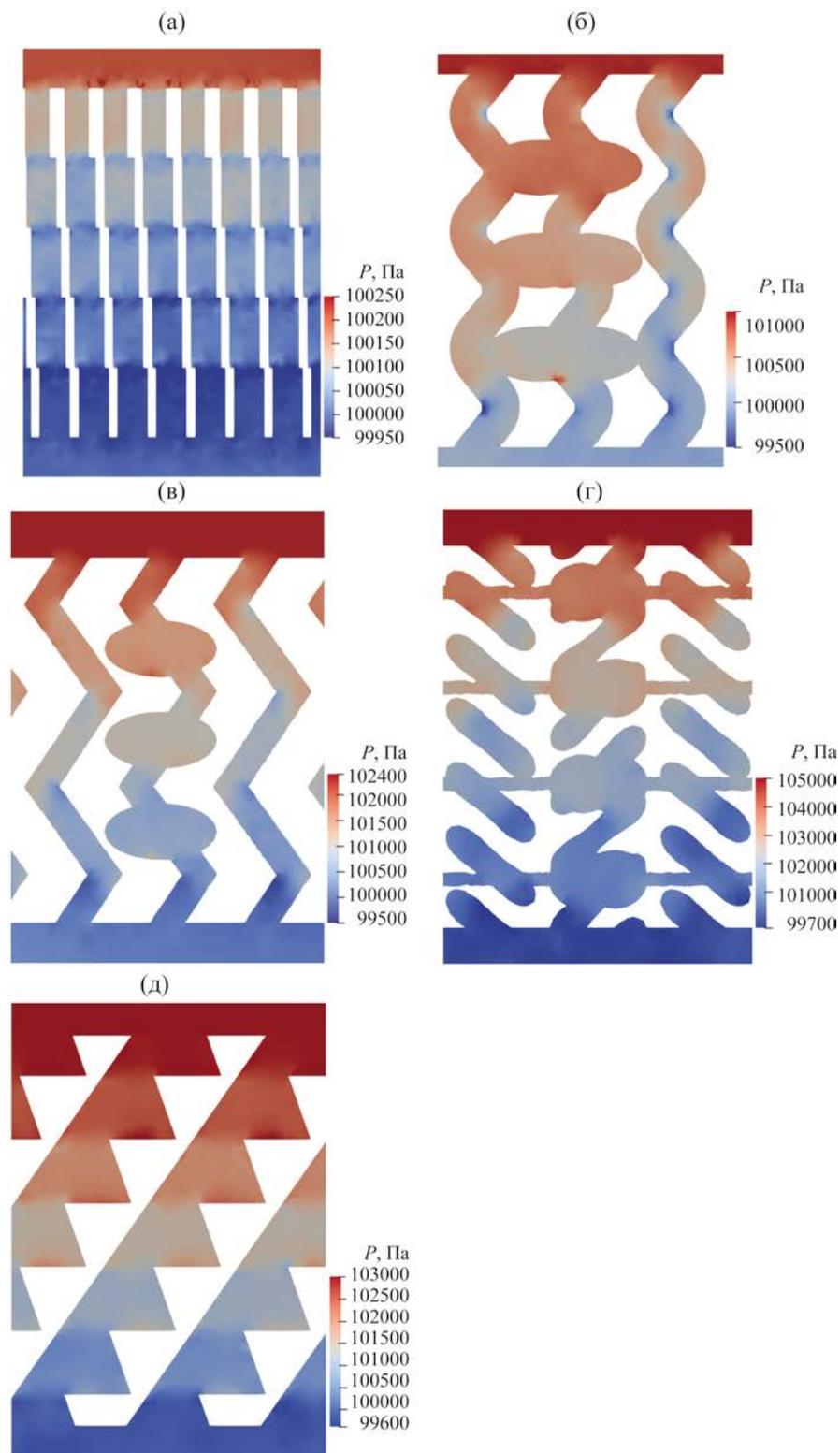


Рис. 1. Карта значений давления газа в двумерном сечении исследуемых моделей по результатам CFD-расчетов: а – модель 1; б – модель 2; в – модель 3; г – модель 4; д – модель 5.

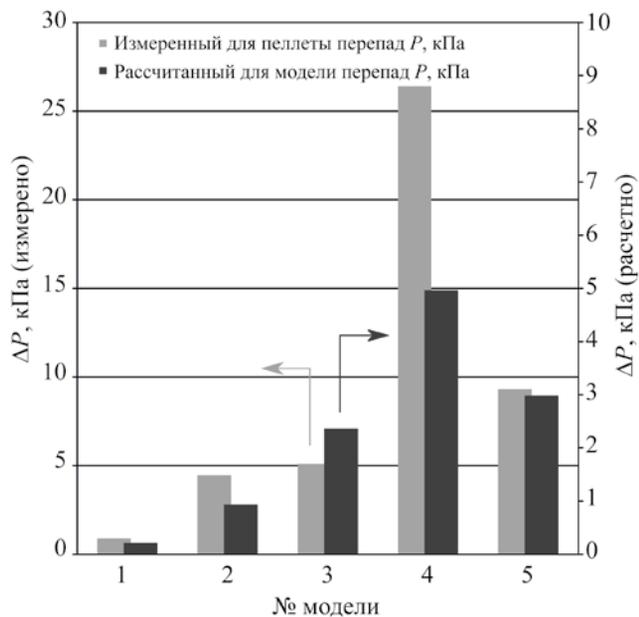


Рис. 2. Перепад давления для моделей и пеллет, полученный методом CFD и измеренный экспериментально.

не имеющий пересечений с горизонтальными каналами, оказался полностью заблокирован и заполнился пылью, что связано с отсутствием возможности перераспределения потока по объёму пеллеты через горизонтальные каналы.

В модели 3 (рис. 3в), в образце после испытаний типичные локации захвата твердых частиц – это угловые участки и прямые отрезки каналов, которые начинают заполняться, если перекрывается угол, что подтверждает сделанное ранее предположение.

В модели 4 фильтрация происходила по всей высоте пеллеты, и она не содержит ярко выраженных локаций захвата твердых частиц (рис. 3г). Типичные локации захвата твердых частиц в модели 5 связаны с местами соединения вершин соседних тетраэдров (рис. 3д).

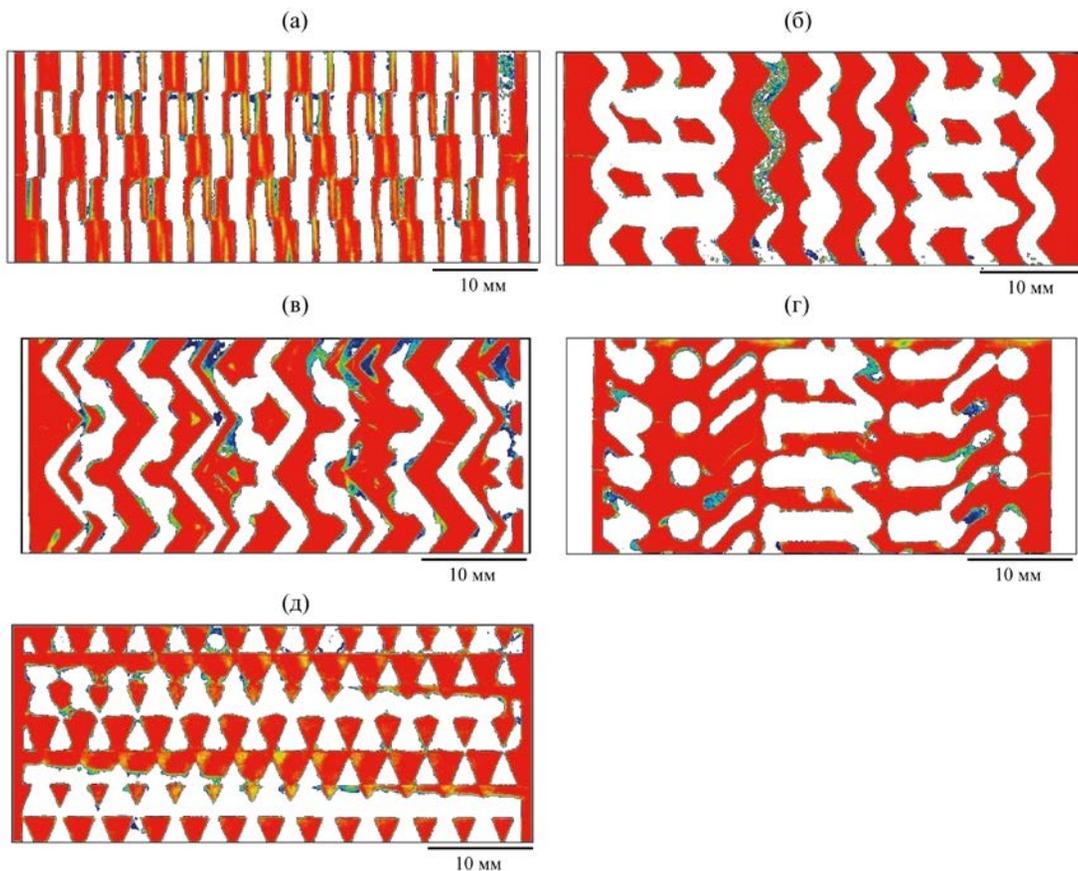


Рис. 3. Сечение исследуемых моделей после стендовых испытаний по данным рентгеновской компьютерной томографии (красным цветом показан керамический скелет образца, синим и зеленым – уловленные твердые частицы): а – модель 1; б – модель 2; в – модель 3; г – модель 4; д – модель 5.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Полученные результаты позволяют сделать вывод об эффективности применения методов вычислительной гидродинамики и программного обеспечения blueCFD-Core для решения задач моделирования и дизайна элементов фильтров промышленных установок. Сопоставление прогнозных данных по перепаду давления, полученных на этапе численных расчетов, с экспериментально измеренными значениями позволило подтвердить прогнозные характеристики на уровне трендовых зависимостей и, тем самым, верифицировать численную методику анализа для фильтрующих элементов со сложной геометрией.

Проведение фильтрационных испытаний изготовленных 3D-печатью керамических фильтров с их последующим исследованием методом рентгеновской компьютерной томографии позволило определить типичные локации захвата твердых пылевидных частиц. Частицы могут задерживаться в местах изгибов или на выступах геометрии фильтра, а также откладываться тонким слоем на поверхности стенок каналов. Фильтрационные испытания проводились до момента начала роста перепада давления, что объясняет не полное закупоривание каналов по данным томографии. По результатам проведенных исследований, наиболее перспективные показатели продемонстрировали пеллеты, подготовленные по моделям № 1, 2 и 3.

Для модели 1 характерен наименьший перепад давления (0.9 кПа), а эффективность фильтрации может быть повышена за счет изменения высоты слоёв сотовой структуры или изменения сдвигового шага между слоями. В моделях 2 и 3 перепад давления выше чем в модели 1 и составляет 4.5 и 5.1 кПа соответственно. В модели 2 требуется изменение положения горизонтальных каналов, что должно позволить избежать закупорки вертикальных каналов. Фильтрация в модели 3 происходит в достаточной степени равномерно по объёму пеллеты. Для моделей 4 (26.4 кПа) и 5 (9.3 кПа) высокий перепад давления не оправдывает их практическое использование.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов, требующего раскрытия в данной статье.

ИНФОРМАЦИЯ ОБ АВТОРАХ

Никульшин Павел Анатольевич, д.х.н., ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-3243-7835>, Web of Science ResearcherID D-5952-2014

Дорохов Виктор Сергеевич, к.х.н., ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-2543-5540>, Web of Science ResearcherID E-8474-2014, Российский индекс научного цитирования AuthorID 746854

Овсиенко Ольга Леонидовна, д.т.н., Scopus authorId 6504340501.

Рогозина Марина Викторовна, к.ф.-м.н., ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-5271-7810>, Web of Science ResearcherID K-8622-2013

Аникеев Никита Андреевич, к.ф.-м.н., Российский индекс научного цитирования AuthorID 739082

Чугунов Святослав Сергеевич, к.т.н., ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-0670-8152>, Web of Science ResearcherID AAJ-5585-2021

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Heidenreich S.* Hot gas filtration. A review // *Fuel*. 2013. V. 104. P. 83–94. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2012.07.059>
2. *Yu Y., Tao Y., Wang F.-L., Chen X., He Y.-L.* Filtration performance of the granular bed filter used for industrial flue gas purification: A review of simulation and experiment // *Separation and Purification Technology*. 2020. V. 251. P. 117318. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.117318>
3. *Kang J.-L., Ciou Y.-C., Lin D.-Y., Shan-Hill Wong D., Jang S.-S.* Investigation of hydrodynamic behavior in random packing using CFD simulation // *Chemical Engineering Research and Design*. 2019. V. 147. P. 43–54. <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2019.04.037>
4. *Afkhami M., Hassanpour A., Fairweather M.* Effect of Reynolds number on particle interaction and agglomeration in turbulent channel flow // *Powder Technology*. 2019. V. 343. P. 908–920. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2018.11.041>
5. *Овсиенко О.Л., Дорохов В.С., Гусева А.И., Криворученко Д.С., Пугачева Л.В., Сидельников И.В., Никульшин П.А.* Физико-химические и функциональные характеристики материалов и катализаторов защитных слоев гетерогенных процессов гидроочистки. I. Материалы активной фильтрации (МАФ) // *Катализ в промышленности*. 2019. Т. 19. № 4. С. 316–328. <https://doi.org/10.18412/1816-0387-2019-4-316-328> [*Ovsienko O.L., Dorokhov V.S., Guseva A.I.,*

- Krivoruchenko D.S., Pugacheva L.V., Sidel'nikov I.V., Nikul'shin P.A.* Physicochemical and functional characteristics of materials and catalysts in protective layers of heterogeneous hydrotreatment processes. I. Materials of active filtering (MAF) // *Kataliz v promyshlennosti*. 2019. V. 19. № 4. P. 316–328].
6. *Лекош Ф., Анкетий Ж.* Элемент для разделения фильтрацией в поперечном потоке, содержащий изогнутые каналы // Патент РФ № 2744589С2. Заявлено 13.12.2017.
 7. *Анкетий Ж.* Новые геометрические формы многоканальных трубчатых элементов, предназначенных для тангенциальной сепарации, содержащих встроенные усилители турбулентности, и способ их изготовления // Патент РФ № 2692723 С2. Заявлено 21.07.2015.
 8. *Анкетий Ж.* Элемент для тангенциальной сепарации, содержащий встроенные препятствия для потока, и способ его изготовления // Патент РФ № 2693159 С2. Заявлено 21.07.2015.
 9. *Raux S.* Particulate filter with variable canal geometry and methods of manufacturing such a filter // Patent WO № 2017207226 A1. 09.05.2017.
 10. *Dang B.V., Charlton A.J., Li Q., Kim Y.C., Taylor R.A., Le-Clech P., Barber T.* Can 3D-printed spacers improve filtration at the microscale? // *Separation and Purification Technology*. 2021. V. 256. P. 117776. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.117776>
 11. *Middelkoop V., Coenen K., Schalck J., Annaland M.V.S., Gallucci F.* 3D printed versus spherical adsorbents for gas sweetening // *Chemical Engineering J*. 2019. V. 357. P. 309–319. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2018.09.130>
 12. *Овсиенко О.Л., Сидельников И.В., Rogozina M.B., Никульшин П.А.* Способ получения каталитических материалов методом 3D-печати // Патент РФ № 2734425 С2. Заявлено 21.03.2019.
 13. *Никульшин П.А., Дорохов В.С., Овсиенко О.Л., Rogozina M.B., Анিকেев Н.А., Сидельников И.В., Чугунов С.С.* Разработка перспективных материалов защитного слоя для каталитических реакторов с применением компьютерного моделирования и аддитивных технологий // *Нефтехимия*. 2021. Т. 61. № 6. С. 796–807 [*Nikulshin P.A., Dorokhov V.S., Ovsienko O.L., Rogozina M.V., Anikeev N.A., Sidel'nikov I.V., Chugunov S.S.* Computer-aided modeling and additive manufacturing of promising protective layer materials for catalytic reactors // *Petrol. Chemistry*. 2021. V. 61. № 11. P. 1207–1216. <https://doi.org/10.1134/S0965544121110098>].
 14. FreeCAD: Your own 3D parametric modeler [Электронный ресурс]. URL: <https://www.freecadweb.org/> (дата обращения: 01.10.2022).
 15. *Weller H.G., Tabor G., Jasak H., Fureby C.* A tensorial approach to computational continuum mechanics using object-oriented techniques // *Computers in Physics*. 1998. V. 12. № 6. P. 620. <https://doi.org/10.1063/1.168744>
 16. blueCFD-Core Project Enabling native use of OpenFOAM® on Windows [Электронный ресурс]. URL: <http://bluecfd.github.io/Core/> (дата проверки: 01.10.2022).
 17. *Geuzaine C., Remacle J.F.* Gmsh: A 3-D finite element mesh generator with built-in pre- and post-processing facilities // *Intern. J. for Numerical Methods in Engineering*. 2009. V. 79. № 11. P. 1309–1331. <https://doi.org/10.1002/nme.2579>
 18. ParaView [Электронный ресурс]. URL: <https://www.paraview.org/> (дата обращения: 01.10.2022).
 19. *Ji X., Wang W., Lou X., Peng J., Li Z.* A Centrifugation-Enhanced High-Efficiency Micro-Filter with Spiral Channel // *TRANSDUCERS 2007 - International Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems Conference*. 2007. Lyon (France). P. 1865–1868. <https://doi.org/10.1109/SENSOR.2007.4300520>