

УДК 678.6/.7, 541.64/.68

**Э.М. Нуруллаев, А.С. Ермилов, Д.С. Гуров**

Пермский национальный исследовательский политехнический университет

## **ОПТИМИЗАЦИЯ ГРАНУЛОМЕТРИЧЕСКОГО СОСТАВА ТВЕРДЫХ ДИСПЕРСНЫХ НАПОЛНИТЕЛЕЙ ПОЛИМЕРНЫХ КОМПОЗИЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ**

Проведен системный анализ методов расчета и выбор наиболее эффективных методов вычисления предельного наполнения полимерных композиционных материалов с дисперсными наполнителями, реализация их в виде программ для выполнения инженерных расчетов. Проведена формализация и разработано алгоритмическое и программное обеспечение решения задач оптимизации гранулометрического состава твердых дисперсных наполнителей композиционных материалов; проведена их апробация на решении различных, в том числе практических, задач оптимизации гранулометрического состава полимерных композиционных материалов, наполненных дисперсными частицами.

Рассчитаны плотности упаковки для трех- и четырехфракционных смесей с использованием вышеуказанных методов и проведены сравнения с опытными данными. На основании полученных результатов вычислены абсолютная ошибка и среднее значение абсолютной ошибки расчета плотности упаковки для каждого метода. Показано, что наименьшую среднюю абсолютную ошибку имеет комбинаторно-мультипликативный метод – 0,0029; ошибка вероятностного метода превышает ошибку комбинаторно-мультипликативного метода почти в 4,73 раза, а ошибка симплекс-комбинаторного метода – в 9,03 раза. Сделан вывод о наиболее оптимальных методах расчета плотности упаковки.

**Ключевые слова:** предельное наполнение, композиционный материал, дисперсные наполнители, расчетный модуль, алгоритмическое и программное обеспечение, оптимизация, плотность упаковки.

**E.M. Nurullaev, A.S. Ermilov, D.S. Gurov**

Perm National Research Polytechnic University

## **OPTIMIZATION OF GRADING OF POLYMER COMPOSITES SOLID DISPERSED FILLERS**

System analysis of calculation methods and selection of the most effective methods of computing limit filling of polymer composites (PC) with dispersed fillers are carried out. They are realized in form of programs for engineering calculations. Algorithmic support and software of optimization problems of PC's solid dispersed fillers grading are formalized and developed. The approbation of the methods is carried out by problems of optimization of granulometric structure of polymeric composite materials filled with disperse particles.

Packing density for the 3- and 4-fractional mixes are calculated using the above methods and comparisons with experimental data are carried out. On the basis of obtained results the absolute error and its average value in packing density calculation for every method are estimated. It is shown that combinatorial multiplier method has the least average error – 0,0029. It is less than error of probabilistic

method almost by 4,73 times and error of simplex-combinatory method by 9,03 times. The conclusion about optimum methods of calculation of packing density is made.

**Keywords:** limit filling, polymer composite material, disperse fillers, calculation module, algorithmic support and software, optimization, packing density.

Оптимизация гранулометрического состава твердых дисперсных компонентов является одной из задач оптимального проектирования полимерных композиционных материалов (ПКМ), решаемой обычно на этапе выбора типов, размеров частиц и объемных долей фракций твердого дисперсного наполнителя (ТДН). Такая задача возникает, например, при необходимости максимизации плотности упаковки фракций компонентов твердой фазы ПКМ для получения возможно меньшей вязкости неотвердевшего высоконаполненного материала в процессе формирования из него изделий с целью обеспечения наиболее благоприятных условий технологии переработки (безопасность производства, производительность) и показателей качества готовых изделий из ПКМ (монолитность, механические свойства).

Математическая постановка задачи оптимизации гранулометрического состава для заданных размеров частиц ТДН при выполнении условия оптимальности по другим характеристикам может быть записана в виде следующей задачи нелинейного программирования [1]:

$$\left. \begin{aligned} \varphi_m(\bar{\varphi}, \bar{\theta}, \bar{D}) &\rightarrow \max; \\ \varphi_j^0 &= \varphi_{j_1} + \varphi_{j_2} + \dots + \varphi_{j_{m_j}} = \sum_{v=1}^{m_j} \varphi_{jv}; \\ 0 \leq \varphi_{jv}^{\min} &\leq \varphi_{jv}^{\max} \leq \varphi_j^0, \quad v = \bar{1}, m; \\ \varphi_j^0 &= \frac{x_j^0 / y_j^0}{\sum_{j \in I_n} x_j^0 / y_j^0}; \\ \sum_{j=1}^n \varphi_j^0 &= 1 \end{aligned} \right\} \forall j \in I_n, \quad (1)$$

где  $\bar{\varphi}, \bar{\theta}, \bar{D}$  – векторы соответственно объемных долей, пористостей и размеров частиц ТДН в составе;  $\varphi_j^0$  – оптимальные объемные доли компонентов в составе ТДН;  $\varphi_{jv}$  – объемная доля  $v$ -й фракции  $j$ -го

компонента в составе ТДН;  $m_j$  – число фракций  $j$ -го ТДН в составе;  $\varphi_{jv}^{\min}$ ,  $\varphi_{jv}^{\max}$  – соответственно нижние и верхние границы для объемных долей фракций ТДН в составе;  $x_j^0$  – оптимальные для соответствующего комплекса характеристики (например, энергетические характеристики для РТТ) концентрации ТДН в составе;  $v_j$  – плотности ТДН;  $I_n$  – множество индексов, принадлежащих ТДН;  $n$  – количество компонентов ТДН в составе ПКМ.

Результатом решения задачи (1) является вектор оптимальных объемных долей фракций ТДН в составе

$$\bar{\varphi}^0 = \left\{ \varphi_{jv}^0; \forall_j \in I_n, v = \bar{1}, \bar{m}_j \right\}, \quad (2)$$

где  $\varphi_{jv}^0$  – оптимальная объемная доля  $v$ -й фракции  $j$ -го ТДН в составе.

Переход к оптимальным концентрациям соответствующих фракций ТДН в составе композита (вектор  $\bar{x}^0 = \left\{ x_j^0; \forall_j \in I_n, \gamma = \bar{1}, \bar{m}_j \right\}$ ) производится по формуле

$$x_j^0 = \frac{\varphi_j^0 / \gamma_j}{\sum_{j \in I_n} \varphi_j^0 / \gamma_j} P \left( \forall_j \in I_n, \gamma = \bar{1}, \bar{m}_j \right), \quad (3)$$

где  $P = \sum_{j \in I_n} \sum_{v=1}^{m_j} \bar{x}_j^0 = \sum_{j \in I_n} x_j^0$  – сумма концентраций ТДН (порошкообразных компонентов) в составе композита.

Известно, что фракционный состав, форма частиц и характер физико-химического взаимодействия ТДН полимерных композиционных материалов с матрицей связующего существенно влияют на комплекс основных свойств (реологических, механических и др.) ПКМ. При этом преимущественная роль с точки зрения степени влияния принадлежит агрегированному параметру  $\varphi/\varphi_m$ , определяющему относительную степень объемного наполнения системы и равному отношению объемной доли всех ТДН к максимально возможной их объемной доле (предельному наполнению) в композиции. В связи с этим возникает необходимость в определении предельного наполнения  $\varphi_m$  для заданного гранулометрического состава твердых дисперсных компонентов ПКМ.

В настоящее время существуют различные методы расчета плотности упаковки, к ним относятся инженерно-феноменологические методы (метод Фанеса [1], метод Вестмана [2, 3], метод Венцковского и Стрека [4, 5], комбинаторно-мультипликативный метод [6–8]); эмпирические методы [9, 10]; формально-математические методы (метод Тота [11], метод Роджерса [12]); вероятностные методы [13], симплекс-комбинаторный метод [14].

### ***Выбор и обоснование методов расчета плотности упаковки дисперсных наполнителей***

Наибольший интерес представляют следующие методы: комбинаторно-мультипликативный, Венцковского и Стрека, симплекс-комбинаторный. Эти методы по сравнению с другими имеют наименьшую погрешность при расчете.

**Метод Венцковского и Стрека** [4, 5]. Метод основан на понятии базовой фракции – такой фракции, которая способна разместить в себе и крупные, и мелкие частицы. Базовая фракция рассчитывается так, чтобы все мелкие частицы вошли в поры, образованные частицами базовой фракции. Все крупные частицы базовой фракции должны быть отделены друг от друга достаточными прослойками из смеси базовой фракции с мелкими частицами. Поскольку заранее неизвестно, какая из фракций является базовой, то перебираются все фракции как базовые, а за результат принимают наибольшее значение коэффициента пористости  $k$ , который берется как отношение объема пор в смеси к объему твердой фазы.

Пористость смеси определяется из соотношения

$$q = \frac{k}{k+1}. \quad (4)$$

Предельное наполнение соответственно по формуле

$$\varphi_m = 1 - q. \quad (5)$$

Для коэффициентов пористости двухфракционных смесей авторами предложены уравнения

$$k = \varphi_1 k_1 + \varphi_2 [K''(k_2 - 1) - 1]; \quad (6)$$

$$k = \varphi_1 K' k_1 + \varphi_2 k_2; \quad (7)$$

$$k = \varphi_1 k_1 + \varphi_2 k_2 - K''' k_1 (k_2 + 1) / (k_1 + k_2 + 1), \quad (8)$$

где  $\varphi_1, \varphi_2$  – объемные доли монофракций (1-й и 2-й соответственно);  $k, k_1, k_2$  – коэффициенты пористости смеси и монофракций соответственно;  $K', K'', K'''$  – эмпирические коэффициенты, определяемые из экспериментальных результатов, зависящие от отношения диаметров частиц фракций ( $\psi$ ).

Коэффициенты  $K', K'', K'''$  рассчитываются по следующим уравнениям:

$$K = \frac{\psi(1+2\psi)}{\psi(1+2\psi) + (1-\psi)^2}; \quad (9)$$

$$K'' = \frac{\psi^2(3+\psi)}{\psi^2(3+\psi) + (1-\psi)^3}; \quad (10)$$

$$K''' = \frac{(1-\psi)^2}{\psi(1+5\psi) + (1-\psi^3)}. \quad (11)$$

Обобщив расчетную модель для двухфракционной смеси, авторы предложили метод расчета полифракционной смеси твердых дисперсных материалов

$$k = \sum_{i=1}^{\sigma-1} \varphi_i k_i K'_{\sigma i} + \varphi_{\sigma} k_{\sigma} + \sum_{i=\sigma+1}^N \varphi_i [K''_{i\sigma} (k_i + 1) - 1], \quad (12)$$

где индекс  $\sigma$  соответствует базовой фракции;  $N$  – суммарное число фракций (при этом  $\sum_{i=1}^N \varphi_i = 1$ );  $K'_{\sigma i}, K''_{i\sigma}$  – эмпирические коэффициенты, равные, рассчитанные для  $\psi_{\sigma i} = d_{\sigma} / d_i (i = 1, 2, \dots, \sigma - 1, \sigma)$ ,  $\psi_{i\sigma} = d_i / d_{\sigma} (i = \sigma, \sigma + 1, \dots, N)$  соответственно. Погрешность метода расчета составляет  $-15 \dots +25 \%$ .

**Комбинаторно-мультипликативный метод** [6–8]. Метод основан на определении пористости (объемной доли пор) смеси двух фракций с последующей заменой их одной эквивалентной по размеру частиц фракцией, и т.д. до  $n$ -й фракции ( $n$  – число фракций дисперсных

компонентов). В результате  $(n - 1)$ -й итерации имеем объемную долю пор в смеси из  $n$  фракций, равную  $\varphi_p$  (при этом  $\varphi_m$  – объемная доля частиц дисперсного наполнителя).

Исходной информацией для расчета  $\varphi_p$  являются вектор  $D = (d_1, d_2, \dots, d_i, \dots, d_n)$  с упорядоченными по возрастанию размерами частиц и соответствующие ему векторы пористости  $Q = (q_1, q_2, \dots, q_i, \dots, q_n)$  и объемных долей  $F = (\varphi_1, \varphi_2, \dots, \varphi_i, \dots, \varphi_n)$ .

Например, пористость смеси  $i$ -й ( $i = 1, 2, \dots, n - 1$ ) и  $j$ -й ( $j = i + 1$ ) фракций составляет  $q_z$  (для последней итерации пористость  $q_z = \varphi_p$ ), тогда результатом первой итерации является фракция, эквивалентная смеси первой и второй фракций, характеристики которой определяются следующими выражениями:

$$\left. \begin{aligned} q^{i+1} &= q_z = F_z(d^i, d_j, q^i, q_j, \varphi^i, \varphi_j); \\ d^{i+1} &= \frac{(\varphi^i + \varphi_j)}{\varphi^i / d^i + \varphi_j / d_j}; \\ \varphi^{i+1} &= (\varphi^i + \varphi_j) \end{aligned} \right\}, \quad (13)$$

где  $q^{(i+1)}, d^{(i+1)}, \varphi^{(i+1)}$  – пористость, размер частиц и объемная доля эквивалентной фракции, вычисленные в результате  $i$ -й итерации;  $F_z(d^i, d_j, q^i, q_j, \varphi^i, \varphi_j)$  – функция, определяющая зависимость пористости смеси двух фракций от их характерных параметров и объемных долей;  $q^{(i)}, d^{(i)}, \varphi^{(i)}$  – пористость, размер частиц и объемная доля эквивалентной фракции на  $i$ -й итерации  $q^{(1)} = q_1, d^{(1)} = d_1, \varphi^{(1)} = \varphi_1$ ;  $\varphi_j, d_j$  – объемная доля и размер  $j$ -й фракции.

На второй итерации ( $i = 2$ ) эквивалентная фракция «смешивается» с третьей ( $j = 3$ ), в результате имеем фракцию, эквивалентную смеси из первой, второй и третьей фракций, с характеристиками, определяемыми по формулам (13), и т.д.

**Симплекс-комбинаторный метод.** В расчете применен комбинаторный метод [14] и осуществлен вероятностный подход к рассмотрению структуры, создаваемой дисперсными компонентами ПКМ. Данный метод позволяет, в частности, определить свободный объем (пористость) наполнителя. Пористость определяется как сумма объе-

мов пор, отнесенная к общему объему системы. Пора может образоваться в результате контакта не менее чем четырех частиц. Поэтому в методе рассматривается пористость симплекса, образованного путем соединения центров четырех касающихся друг друга шаров, между которыми заключено незаполненное пространство – пора.

Пористость симплекса ( $q_c$ ) определяется из геометрических представлений:

$$q_c = v_{\text{п}} / V_c = \frac{V_c - V_{1u1} - V_{1u2} - V_{1u3} - V_{1u4}}{V_c}, \quad (14)$$

где  $v_{\text{п}}$  – объем поры;  $V_c$  – объем симплекса;  $V_{1ui}$  – объем части  $i$ -го шара, находящийся в симплексе. Величина  $V_{1ui}$  находится по формуле

$$V_{1ui} = \frac{\pi Z_i d_i^3}{6}, \quad i = 1, 2, 3, 4, \quad (15)$$

где  $Z_i$  – часть объема шара, вырезаемая каждым из четырехгранных углов трехмерного симплекса;  $d_i$  – диаметр  $i$ -го шара. Значение  $Z_i$  определяется по следующей формуле:

$$Z_i = \frac{a_{ci}}{4\pi}, \quad i = 1, 2, 3, 4, \quad (16)$$

где  $a_{ci}$  – телесный угол пирамиды с вершиной в центре  $i$ -го шара.

Поскольку твердый дисперсный компонент ПКМ представляют собой обычно статистическую смесь наполнителей, состоящую в общем случае из  $N$  монофракций, то число симплексов данного типа в единице объема носит вероятностный характер. Количество вариантов симплексов  $U$  определяется числом монофракций и равняется числу сочетаний с повторением из  $N$  по 4:

$$U = \frac{(N + 3)!}{4!(N - 1)!}. \quad (17)$$

При этом вероятность того, что данный симплекс состоит из данных четырех частиц ( $P_{jjjj}$ ), вычисляется по уравнению (при условии, что  $0! = 1$ )

$$P_{jjj} = \frac{4!}{\prod_1^N (m_j)!} \prod_1^N (P_{2j})^{m_j}, \quad (18)$$

где  $m_j$  – число частиц  $j$ -й фракции;  $P_{2j}$  – вероятность того, что в данном симплексе данная частица является частицей  $j$ -й фракции.

Для нахождения пористости всей смеси ТДН необходимо перебрать возможные варианты и рассчитать для них  $v_{njjj}$ ,  $V_{cjjj}$  и  $P_{jjj}$ .

Все варианты перебираются из условий

$$\sum_{j=1}^N m_j = 4, \quad m_j = 0, 1, 2, 3, 4. \quad (19)$$

Вероятность  $P_{2j}$  определяется формулой

$$P_{2j} = \frac{P_{1j}}{\left[ Z_j \sum_{j=1}^N \left( \frac{P_{1j}}{Z_j} \right) \right]}; \quad (20)$$

$$P_{1j} = \frac{\Phi_j}{\left[ d_j^3 \sum_{j=1}^N \left( \frac{\Phi_j}{d_j} \right)^3 \right]}, \quad (21)$$

где  $\Phi_j$  – объемная доля  $j$ -й фракции в общем объеме смеси ТДН;  $d_j$  – диаметр частиц  $j$ -й монофракции ТДН;  $Z_j$  – величина, характеризующая способность частицы большого диаметра одновременно участвовать в образовании большего числа симплексов, чем частиц с меньшим диаметром.

Способность к участию в образовании нескольких симплексов пропорциональна обратной величине объемной доли данной частицы, которая вырезается симплексом. Первоначально эту способность ( $1/Z_j$ ) можно оценить по эталонному симплексу, в котором  $d_1 = d_j$ ,  $d_2 = d_3 = d_4 = d_{\min j}$ , тогда  $Z_j = Z_1$ . После расчета пористости смеси величина  $Z_j$  может быть уточнена из условия

$$\Phi_j = \sum_1^U (P_{jjj} V_{1uj}), \quad (22)$$



где  $\sum_1^U (P_{jjj} V_{1uj})$  – объем частей, принадлежащих  $j$ -му шару, собранных из всех симплексов.

Если данное соотношение не выполняется, то причина в следующем:  $Z_j$  рассчитана по эталонному симплексу приближенно или  $d_{\max j} / d_{\min j} > 6,46$ , т.е. часть симплекса не существует, так как частицы с минимальными размерами «проваливаются» между крупными. Для выполнения соотношения решают уравнение относительно  $Z_j$  итерационным методом, рассматривая  $P_{jjj}$  как функцию от  $Z_j$ . Каждое последующее приближение  $Z_j$  вычисляется по формуле

$$Z_j^{(i+1)} = \frac{Z_j^i}{\left\{ \frac{\left[ \varphi_j \sum_1^N \sum_1^U (P_{jjj} V_{1uj}) \right]^{1/9}}{\left[ \sum_1^N \varphi_j \sum_1^U (P_{jjj} V_{1uj}) \right]} \right\}^{0,5 + 0,5}}. \quad (23)$$

Таким образом, пористость смеси ТДН ( $q$ ) определяется формулой

$$q = K_p \frac{\sum_1^k (P_{jjj} v_{njij})}{\sum_1^N (P_{jjj} V_{cjjj})}, \quad (24)$$

где  $K_p$  – коэффициент разрыхления. Пористость системы с соприкасающимися частицами прямо пропорциональна отношению вероятностной суммы объемов пор к общему расчетному объему. При этом коэффициент разрыхления рассчитывается следующим образом:

$$K_p = \frac{\sum_1^N (q_j \varphi_j)}{0,220644}, \quad (25)$$

где  $q_j$  – пористость  $j$ -й монофракции ТДН; 0,220644 – расчетная пористость симплекса из четырех одинаковых шаров. Погрешность симплекс-комбинаторного метода расчета составляет  $\pm 10\%$ . Используя формулы (24) и (25), можно рассчитать пористость смеси фракций

ТДН. Метод позволяет вычислять значения пористости смеси частиц, для которых выполняется неравенство  $d_{\max} / d_{\min} < 6,46$ . Погрешность симплекс-комбинаторного метода расчета составляет  $\pm 10\%$ . Для принятия решения по методам расчета плотности упаковки были проведены расчеты для трех- и четырехфракционных смесей при различных значениях объемных долей. Опытные данные (Венцовского и Стрека) и результаты расчетов приведены в табл. 1 и 2.

В этих таблицах КММ – комбинаторно-мультипликативный метод; ВМ – метод Венцовского и Стрека; СМ – симплекс-комбинаторный метод; Опыт – результаты, полученные опытным путем.

На основании полученных результатов вычислены абсолютная ошибка и среднее значение абсолютной ошибки расчета плотности упаковки для каждого метода. Результаты приведены в табл. 3 и 4.

Таблица 1

Результаты расчетов плотности упаковки  
для трехфракционных смесей

№ п/п	Размер частиц и пористость	Объемные доли фракций $F = (\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3)$	Опыт	КММ	ВМ	СМ
1	$D = (9,52; 6,35; 3,18)$ $Q = (0,401; 0,383; 0,379)$	0,429; 0,429; 0,142	0,635	0,636	0,628	0,646
2		0,600; 0,200; 0,200	0,645	0,644	0,632	0,657
3		0,500; 0,167; 0,333	0,647	0,650	0,644	0,662
4		0,375; 0,375; 0,250	0,645	0,643	0,637	0,654
5		0,167; 0,500; 0,333	0,642	0,646	0,645	0,650
6		0,333; 0,333; 0,334	0,648	0,646	0,644	0,656
7		0,375; 0,250; 0,375	0,652	0,648	0,648	0,658
8		0,286; 0,286; 0,428	0,651	0,649	0,653	0,655
9		0,200; 0,200; 0,600	0,648	0,650	0,649	0,648
10		0,333; 0,167; 0,500	0,652	0,652	0,659	0,659
11	$D = (25,4; 9,52; 3,18)$ $Q = (0,437; 0,401; 0,379)$	0,429; 0,429; 0,142	0,671	0,688	0,675	0,661
12		0,600; 0,200; 0,200	0,678	0,710	0,712	0,702
13		0,500; 0,167; 0,333	0,743	0,725	0,751	0,703
14		0,375; 0,375; 0,250	0,705	0,705	0,710	0,668
15		0,167; 0,500; 0,333	0,678	0,683	0,708	0,663
16		0,333; 0,333; 0,334	0,708	0,704	0,729	0,670
17		0,375; 0,250; 0,375	0,709	0,712	0,729	0,678
18		0,286; 0,286; 0,428	0,704	0,700	0,711	0,669
19		0,200; 0,200; 0,600	0,685	0,684	0,682	0,661
20		0,333; 0,167; 0,500	0,709	0,706	0,709	0,680

Таблица 2

Результаты расчетов плотности упаковки  
для четырехфракционных смесей

№ п/п	Размеры частиц $D = (25,4; 12,7; 6,35; 3,18)$ Пористость $Q = (0,437; 0,405; 0,384; 0,379)$					
	Объемные доли фракций $F = (\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3, \varphi_4)$	Опыт	КММ	ВМ	СМ	
1	0,375; 0,125; 0,375; 0,125	0,695	0,695	0,680	0,668	
2	0,143; 0,429; 0,286; 0,143	0,675	0,672	0,660	0,669	
3	0,333; 0,333; 0,222; 0,111	0,692	0,684	0,679	0,668	
4	0,273; 0,182; 0,273; 0,273	0,700	0,698	0,683	0,667	
5	0,250; 0,250; 0,250; 0,250	0,694	0,695	0,679	0,669	
6	0,200; 0,300; 0,200; 0,300	0,702	0,694	0,679	0,670	
7	0,222; 0,222; 0,222; 0,333	0,699	0,696	0,683	0,667	
8	0,250; 0,125; 0,250; 0,375	0,695	0,694	0,687	0,664	
9	0,167; 0,167; 0,167; 0,500	0,686	0,686	0,687	0,661	
10	0,300; 0,300; 0,300; 0,100	0,625	0,680	0,674	0,667	

Таблица 3

Результаты расчетов абсолютной ошибки  
для трехфракционных смесей

№ п/п	Опыт	Расчетные значения по методам			Абсолютные величины ошибок		
		КММ	ВМ	СМ	$\Delta$ КММ	$\Delta$ ВМ	$\Delta$ СМ
1	0,635	0,636	0,628	0,646	0,001	0,007	0,011
2	0,645	0,644	0,632	0,657	0,001	0,013	0,012
3	0,647	0,65	0,644	0,662	0,003	0,003	0,015
4	0,645	0,643	0,637	0,654	0,002	0,008	0,009
5	0,642	0,646	0,645	0,65	0,004	0,003	0,008
6	0,648	0,646	0,644	0,656	0,002	0,004	0,008
7	0,652	0,648	0,648	0,658	0,004	0,004	0,006
8	0,651	0,649	0,653	0,655	0,002	0,002	0,004
9	0,648	0,65	0,649	0,648	0,002	0,001	0
10	0,652	0,652	0,659	0,659	0	0,007	0,007
11	0,671	0,688	0,675	0,661	0,017	0,004	0,010
<b>12</b>	<b>0,678</b>	<b>0,710</b>	<b>0,712</b>	<b>0,702</b>	<b>0,032</b>	<b>0,034</b>	<b>0,024</b>
13	0,743	0,725	0,751	0,703	0,018	0,008	0,040
14	0,705	0,705	0,71	0,668	0	0,005	0,037
15	0,678	0,683	0,708	0,663	0,005	0,030	0,015
16	0,708	0,704	0,729	0,67	0,004	0,021	0,038
17	0,709	0,712	0,729	0,678	0,003	0,020	0,031
18	0,704	0,7	0,711	0,669	0,004	0,007	0,035
19	0,685	0,684	0,682	0,661	0,001	0,003	0,024
20	0,709	0,706	0,709	0,68	0,003	0	0,029
Среднее значение абсолютной ошибки					0,0040	0,0079	0,0178

Следует отметить, что в опыте № 12 (см. табл. 3) при объемных долях  $F = (0,600; 0,200; 0,200)$  и размере частиц  $D = (25,4; 9,52; 3,18)$  величина абсолютной ошибки относительно опыта большая по всем методам, при этом по методам КММ, ВМ она максимальная. Кроме того, все ошибки имеют один и тот же знак (расчетные значения относительно опыта смещены в большую сторону). Это может говорить о том, что данный опыт можно рассматривать как выброс и исключить его из таблицы. Тогда максимальные относительные погрешности вычисления плотности упаковки рассматриваемыми методами применительно к приведенным данным равны соответственно: КММ – 2,42 %; ВМ – 4,42 %; СМ – 5,38 %. Наименьшую среднюю абсолютную ошибку имеет метод КММ – 0,0040, ошибка метода ВМ превышает ошибку метода КММ почти в 2 раза, а ошибка метода СМ – в 4,45 раза.

Таблица 4

Результаты расчетов абсолютной ошибки  
для четырехфракционных смесей

№ п/п	Опыт	Расчетные значения по методам			Абсолютные величины ошибок		
		КММ	ВМ	СМ	$\Delta$ КММ	$\Delta$ ВМ	$\Delta$ СМ
1	0,695	0,695	0,680	0,668	0	0,015	0,027
2	0,675	0,672	0,660	0,669	0,003	0,015	0,006
3	0,692	0,684	0,679	0,668	0,008	0,013	0,024
4	0,700	0,698	0,683	0,667	0,002	0,017	0,033
5	0,694	0,695	0,679	0,669	0,001	0,015	0,025
6	0,702	0,694	0,679	0,670	0,008	0,023	0,032
7	0,699	0,696	0,683	0,667	0,003	0,016	0,032
8	0,695	0,694	0,687	0,664	0,001	0,008	0,031
9	0,686	0,686	0,687	0,661	0	0,001	0,025
<b>10</b>	<b>0,625</b>	<b>0,680</b>	<b>0,674</b>	<b>0,667</b>	<b>0,055</b>	<b>0,049</b>	<b>0,042</b>
Среднее значение абсолютной ошибки					0,0029	0,0137	0,0261

Как следует из табл. 4, в опыте № 10 при объемных долях  $F = (0,300; 0,300; 0,300; 0,100)$  и размере частиц  $D = (25,4; 12,7; 6,35; 3,18)$  величина абсолютной ошибки самая большая по всем методам. При этом все ошибки имеют один и тот же знак (расчетные значения смещены в сторону увеличения по сравнению с опытом).

Тогда максимальные относительные погрешности вычисления плотности упаковки рассматриваемыми методами применительно к приведенным данным равны соответственно: КММ – 1,13 %; ВМ – 3,28 %; СМ – 4,71 %; МКМ (с) – 0,86 %.

Наименьшую среднюю абсолютную ошибку имеет метод КММ – 0,0029; ошибка метода ВМ превышает ошибку метода КММ почти в 4,73 раза, а ошибка метода СМ – в 9,03 раза.

В результате проведенных исследований можно сделать следующие выводы:

1. На основе метода нелинейного программирования разработан алгоритм программного обеспечения расчета оптимального гранулометрического состава дисперсного наполнителя.

2. Проведено сравнение методов расчета предельной степени объемного наполнения полимерных композиционных материалов твердыми частицами. Наиболее точными оказались комбинаторно-мультипликативный метод Ермилова и Федосеева (погрешность – 1,13 %) и метод Венцовского – Стрека (погрешность – 3,28 %).

### **Библиографический список**

1. Furnas C.C. Grading Aggregates I – Mathematical Relations for Beds of Broken Solid of Maximum Density // *Industrial and Engineering chemistry*. – 1931. – Vol. 23, № 29. – P. 1052–1058.

2. Dinsdale A., Wilkinson W.T. Properties of Whitewar Bodies in Relation to Size of Constituent Particles // *Trans. Brit. Cer. Soc.* – 1966. – Vol. 65, № 7. – P. 391–421.

3. Standish N., Borger D.E. The Porosity of Particulate Mixtures // *Powder Technology*. – 1979. – Vol. 22. – P. 121–125.

4. Wienckowsky A., Strek F. Porovatoci mieszania cial Sypkich. Mieszanie dwuskładnikowe // *Chemia stosowana*. – 1966. – Т. 1 В. – С. 95–127.

5. Wienckowsky A., Strek F. Porovatoci cial Sypkich. Mieszanie wieloskładnikowe // *Chemia stosowana*. – 1966. – Т. 4 В. – С. 431–447.

6. Ермилов А.С., Вальцифер В.А. Методы расчета и оптимизации геометрических параметров структуры полимерных наполненных композиций. Обзор. – М.: Изд-во ЦНИИТИ, 1987.

7. Ермилов А.С., Федосеев А.М. Расчет и оптимизация плотности упаковки дисперсных наполнителей композиционных материалов // *Наукоемкие полимеры и двойные технологии технической химии / УРО РАН*. – Пермь, 1997. – С. 71–72.

8. Ермилов А.С., Федосеев А.М. Комбинаторно-мультипликативный метод расчета предельного наполнения композиционных материа-

лов твердыми дисперсными компонентами // Журнал прикладной химии. – Т. 77, вып. 7. – СПб.: Наука РАН, 2004.

9. Dinsdale A., Wilkinson W.T. Properties of Whitewar Bodies in Relation to Size of Costituent Particles // *Trans. Brit. Cer. Soc.* – 1966. – Vol. 65, № 7. – P. 391–421.

10. Standish N., Borger D.E. The Porosity of Particulate Mixtures // *Powder Technology*. – 1979. – Vol. 22. – P. 121–125.

11. Тот Л.Ф. Расположение на плоскости, на сфере и в пространстве. – М.: Гос. изд-во физ.-мат. лит-ры, 1958.

12. Рождерс К. Укладки и покрытия. – М.: Мир, 1968.

13. Карнаухов А.П. Некоторые общие принципы моделирования пористых систем // Моделирование пористых материалов. – Новосибирск, 1976. – С. 31–46.

14. Химмельблау Д. Прикладное нелинейное программирование: пер. с англ. – М.: Мир, 1975.

### References

1. Furnas C.C. Grading Aggregates I – Mathematical Relations for Beds of Broken Solid of Maximum Density. *Industrial and Engineering chemistry*, 1931, vol. 23, no. 29, pp. 1052-1058.

2. Dinsdale A., Wilkinson W.T. Properties of Whitewar Bodies in Relation to Size of Costituent Particles. *Trans. Brit. Cer. Soc.*, 1966, vol. 65, no. 7, pp. 391-421.

3. Standish N., Borger D.E. The Porosity of Particulate Mixtures. *Powder Technology*, 1979, vol. 22, pp. 121-125.

4. Wienckowsky A., Strek F. Porovatoci mieszania ciel Sypkich. Mieszaniny dwuskładnikowe. *Chemia stosowana*, 1966, vol. 1 B, pp. 95-127.

5. Wienckowsky A., Strek F. Porovatoci cial Sypkich. Mieszaniny wieloskładnikowe. *Chemia stosowana*, 1966, vol. 4 B, pp. 431-447.

6. Ermilov A.S., Valtsifer V.A. *Metody rascheta i optimizatsii geometricheskikh parametrov struktury polimernykh napolnennykh kompozitsiy. Obzor* [Methods of calculation and optimization of geometrical parameters of the structure of polymer-filled compositions. Browse]. Moscow, 1987.

7. Ermilov A.S., Fedoseev A.M. *Raschet i optimizatsiya plotnosti upakovki dispersnykh napolniteley kompozitsionnykh materialov* [Calculation and optimization of the packing density of dispersed fillers composites].

*Naukoemkie polimery i dvoynnye tekhnologii tekhnicheskoy khimii*. Uralskoe otdelenie Rossiyskoy akademii nauk. Perm, 1997, pp. 71-72.

8. Ermilov A.S., Fedoseyev A.M. *Kombinatorno-multiplikativnyy metod rascheta predelnogo napolneniya kompozitsionnykh materialov tverdymi dispersnymi komponentami* [Combinatorial-multiplicative method of calculation of the limit of filling composite solid dispersion components]. *Journal of Applied Chemistry*, St. Petersburg, 2004, vol. 77, no. 7.

9. Dinsdale A., Wilkinson W.T. Properties of Whitewar Bodies in Relation to Size of Constituent Particles // *Trans. Brit. Cer. Soc.*, 1966, vol. 65, no. 7, pp. 391-421.

10. Standish N., Borger D.E. The Porosity of Particulate Mixtures // *Powder Technology*, 1979, vol. 22, pp. 121-125.

11. Tot L.F. *Raspolozhenie na ploskosti, na sfere i v prostranstve* [Location on the plane, on a sphere and in space]. Moscow: Matlit, 1958.

12. Rogers C. *Ukladki i pokrytiya* [Packing and covering]. Moscow: Mir, 1968.

13. Karnaukhov A.P. *Nekotorye obshchie printsipy modelirovaniya poristykh sistem* [Some general principles of modeling porous systems]. *Simulation of porous materials*. Novosibirsk, 1976, pp. 31-46.

14. Himmelblau D. *Prikladnoe nelineynoe programmirovaniye* [Applied Nonlinear Programming]. Moscow: Academic Press, 1975, 534 p.

### Об авторах

**Нуруллаев Эргаш Масеевич** (Пермь, Россия) – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры «Прикладная физика» ФГБОУ ВПО ПНИПУ (614990, г. Пермь, Комсомольский пр., д. 29, e-mail: [ergnur@mail.ru](mailto:ergnur@mail.ru)).

**Ермилов Александр Сергеевич** (Пермь, Россия) – доктор технических наук, профессор, завкафедрой «Технология полимерных материалов и порохов» ФГБОУ ВПО ПНИПУ (614990, г. Пермь, Комсомольский пр., д. 29, e-mail: [ermilov@tpmp.perm.ru](mailto:ermilov@tpmp.perm.ru)).

**Гуров Даниил Сергеевич** (Пермь, Россия) – студент 4-го курса кафедры «Технология полимерных материалов и порохов» ФГБОУ ВПО ПНИПУ (614990, г. Пермь, Комсомольский пр., д. 29).

### **About the authors**

**Nurullaev Ergash Maseevich** (Perm, Russian Federation) – Candidate of Physical and Mathematical Science, Associate Professor, Department of Applied Physics, Perm National Research Polytechnic University (29, Komsomolsky av., Perm, 614990, Russian Federation, e-mail: erg-nur@mail.ru).

**Ermilov Alexander Sergeevich** (Perm, Russian Federation) – Doctor of Technical Sciences, Professor, Head of Department of Technology of Polymer Materials and Powders, Perm National Research Polytechnic University (29, Komsomolsky av., Perm, 614990, Russian Federation, e-mail: ermilov@tpmp.perm.ru).

**Gurov Daniil Sergeevich** (Perm, Russian Federation) – 4-th year student, Department of Technology of Polymer Materials and Powders, Perm National Research Polytechnic University (29, Komsomolsky av., Perm, 614990, Russian Federation).

Получено 14.03.2013