

*В.В. Кузнецов, О.В. Витовский, С.В. Димов, С.П. Козлов*

Институт теплофизики СО РАН им. Кутателадзе, Новосибирск, Россия

## ТЕПЛОМАССОБМЕН ПРИ ХИМИЧЕСКИХ ПРЕВРАЩЕНИЯХ В ЩЕЛЕВЫХ И МИКРОКАНАЛЬНЫХ РЕАКТОРАХ

### АННОТАЦИЯ

В данной работе выполнены экспериментальные и численные исследования гидродинамики и теплообмена в дисковом щелевом теплообменнике-реакторе при радиальном течении реагирующей на стенках канала газовой смеси. Приведены данные по коэффициентам теплоотдачи от нагреваемой стенки к газу, протекающему внутри реактора. Экспериментально исследовано поле температуры каталитически активной пластины реактора при наличии на ней тепловыделения. Проведены расчеты течения и теплообмена в элементе щелевого реактора для каталитической реакции с выделением тепла. Изучено неполное окисление метана в среде кислорода с образованием водородсодержащего синтез-газа в сборке микроканалов. Представлены данные по степени химического превращения метана в зависимости от начального расхода смеси.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Течение реагирующей смеси газов в каналах малого размера используется в теплообменниках-реакторах для интенсификации тепло- и массообмена при химических превращениях [1—5]. Одним из решений данной проблемы является использование дискового щелевого теплообменника-реактора, в котором реализуется радиальное течение реагирующих газов. Реактор такого типа может быть использован для различных химических превращений, таких как одностадийная паровая конверсия оксида углерода, риформинг метана для получения синтез-газа и др. В качестве каталитического слоя такого реактора может использоваться композитный каталитически активный материал с высокой теплопроводностью [6]. Исследование гидродинамики течения и теплообмена при подводе или отводе тепла через цилиндрическую стенку представляет собой важную задачу для подобного типа теплообменного устройства. Для решения задачи интенсификации тепло- и массообмена при химических превращениях в многокомпонентных реагирующих смесях в последнее время используют также микроканальную технологию. Микрохимические реакторы-теплообменники используются для конверсии углеводородов и спиртов в синтез-газ и водород, а также целого ряда других высоконапряженных энергетических и химических процессов.

В работе показано экспериментальное и численное исследование тепловых, диффузионных и физико-химических процессов при течении высокотемпературной реагирующей смеси в сборке микромикроканалов с активированием реакции на стенках каналов.

### 2. ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕПЛООБМЕНА В ЩЕЛЕВОМ РЕАКТОРЕ

#### 2.1. Описание экспериментальной установки и методики эксперимента

Щелевой дисковый теплообменник, схема которого показана на рис. 1, представляет собой набор круглых пластин, расположенных с зазором для течения газа. При этом течение газа в каждом следующем зазоре чередуется по направлению от центра к периферии и от периферии к центру. Диаметр дисков  $D = 41$  мм, диаметр центрального отверстия  $d = 7$  мм, диаметр периферийных отверстий, расположенных под углом  $90^\circ$ , —  $d_4 = 3.2$  мм; толщина пластины 2 мм, периферийные отверстия расположены на расстоянии 16.5 мм от центра. Для измерения коэффициента теплообмена в щелевом дисковом теплообменнике изготовлена установка, которая представлена на рис. 2. Она состоит из цилиндрического корпуса, в котором располагаются пять пластин, изготовленных из теплопроводящего композита. Пластины расположены с зазором  $h$  одна относительно другой. Опыты проведены с зазором  $h = 1.5$  мм и  $h = 1.0$  мм. Для измерения температуры по периметру корпуса (сечение А-А) равномерно зачеканены четыре медь-константовые термопары. На внешней поверхности последней пластины по направлению радиуса расположены три термопары на расстоянии 2.5 мм от края и 6 мм друг от друга. Температура воздуха на входе и на выходе рабочего участка измерялась хромель-копелевыми термопарами с изолированным спаем диаметром 1 мм. Нагрев щелевого дискового теплообменника осуществлялся при помощи электрического тока. Для предотвращения потерь тепла установка теплоизолирована. Перед проведением опыта рабочий участок разогревался до температуры  $\approx 120^\circ\text{C}$ , после этого на вход установки подавался воздух. Расход воздуха контролировался по U-образному манометру, рас-

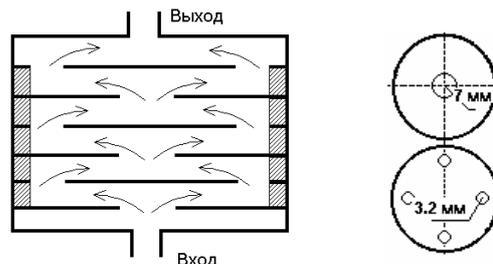


Рис. 1. Схема течения газа в дисковом щелевом теплообменнике и вид составляющих его дисков с одним центральным и четырьмя периферийными отверстиями

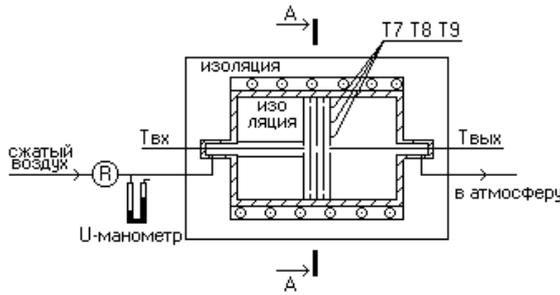


Рис. 2. Схема установки для измерения коэффициента теплоотдачи

положенному на входе в рабочий участок. Объемный расход воздуха измерялся на выходе с помощью барабанного газового счетчика. В стационарном режиме, когда устанавливались все температуры, проводилось измерение температур. Коэффициент теплоотдачи определялся как [7]:  $\alpha = Q / (S_{tot} \Delta T_m)$ ; здесь  $Q$  — тепловая мощность, передаваемая от нагреваемых поверхностей воздуху,  $S_{tot}$  — площадь поверхности пластин, омываемая проходящим воздушным потоком,  $\Delta T_m$  — среднелогарифмическая температура, определяемая как:

$$\Delta T_m = (T_{out} - T_{in}) \cdot \left( \ln \frac{T_{out} - T_w}{T_{in} - T_w} \right)^{-1},$$

где  $T_{in}$  — температура воздуха на входе в щелевой зазор,  $T_{out}$  — температура воздуха на выходе из щелевого зазора,  $T_w$  — среднее значение температуры на цилиндрической стенке. Тепловая мощность  $Q$  определена как:  $Q = G c_p \Delta T$ , где  $G$  — массовый расход воздуха;  $c_p$  — удельная теплоемкость воздуха;  $\Delta T$  — перепад температур воздуха на входе и выходе.

## 2.2. Результаты экспериментов

На рис. 3 приведены зависимости числа Нуссельта от числа Рейнольдса для двух размеров зазора между пластинами теплообменника. Здесь число Рейнольдса и число Нуссельта определены как:  $Re = V \cdot (2h) / \nu$ ,  $Nu = \alpha \cdot (2h) / \lambda$ , где  $V$  — приведенная скорость газа в срединном сечении пластин,

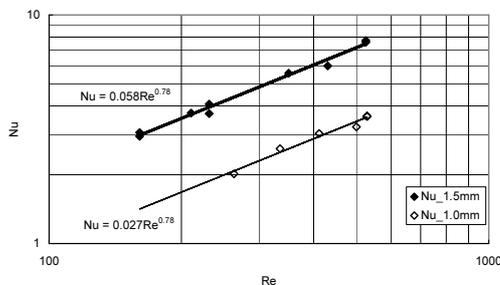


Рис. 3. Зависимости числа Нуссельта от числа Рейнольдса при течении газа в щелевом дисковом теплообменнике для  $h = 1.5$  мм и  $h = 1.0$  мм: точки — эксперимент, сплошные линии — аппроксимации

$2h = D_h$  — гидравлический диаметр,  $\lambda$  — коэффициент теплопроводности. Увеличение числа Нуссельта с ростом числа Рейнольдса характерно для ламинарного течения в каналах малого размера (микрочаналах) [8] и для турбулентного течения [7]. Диапазон чисел Рейнольдса, представленный на рис. 3, не отражает в полной мере характер течения в рассматриваемой системе пластин. При радиальном течении на входе воздуха в центральное отверстие числа Рейнольдса достигают значений 2000 и течение является турбулентным. При выходе воздуха через отверстия на периферии течение является суживающимся и также турбулентным. Возмущения, генерируемые турбулентным течением на входе, распространяются в срединную область, возмущая ламинарное течение.

Таким образом, течение в зазоре между пластинами при радиальном течении является сильно возмущенным, чем объясняется полученная зависимость числа Нуссельта от числа Рейнольдса.

## 2.3. Исследование теплообмена при химической реакции на стенке реактора

Исследование поля температур в дисковом щелевом теплообменнике-реакторе при наличии тепловыделения на стенках выполнялось на установке, на которой измерялась эффективность пластинчатого теплообменника. Труба реактора заполнялась набором пластин из композитного каталитически активного материала с высокой теплопроводностью [6], разделенных кольцами, которые определяли расстояние между пластинами. Течение газа в реакторе формировалась от периферии к центру с последующим изменением от центра к периферии. В отличие от остальных предпоследняя пластина с центральным отверстием имела каталитическое покрытие. Для измерения температур поверхности каталитической пластины четыре хромель-алюмелевые термопары вклеивались в небольшие углубления в ней. Схема расположения термопар приведена на рис. 4. На начальном этапе через реактор прокачивался воздух с необходимым расходом,

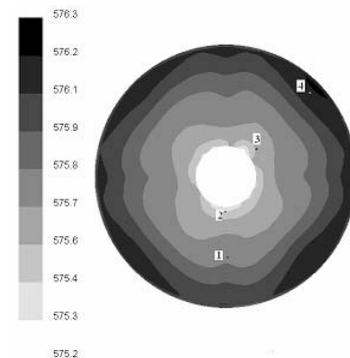


Рис. 4. Расчетное поле температуры поверхности каталитической пластины:  $h = 2$  мм,  $G = 0.85$  г/с, теплопроводность пластины  $10$  Вт/(м·К), толщина пластины  $2$  мм, плотность объемного тепловыделения  $500$  Вт/м<sup>3</sup>. Точками показаны места измерения температур поверхности в эксперименте

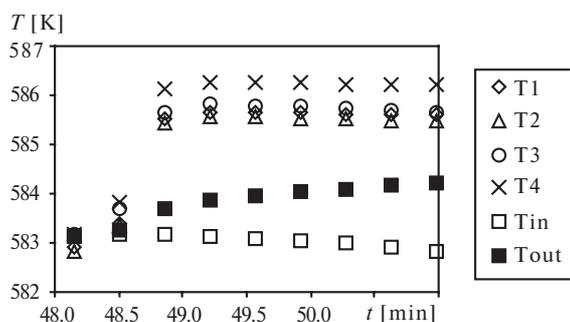


Рис. 5. Изменение температуры поверхности ката­литической пластины (1—4), входной и выходной тем­пературы рабочей смеси газов при начале реакции от времени при  $G = 0.85$  г/с.  $h = 2$  мм

который предварительно нагревался перед реакто­ром до температуры 310 °С. После достижения рав­номерного распределения температуры пластины путем изменения мощностей предварительного нагревателя газа и охранный нагреватель в реактор подавалась рабочая смесь газа. Рабочая смесь газа представляла собой 2 % смесь водорода в воздухе. При прохождении рабочего газа через реактор на каталитической пластине происходит горение водо­рода. На рис. 5 приведено изменение температуры поверхности катализатора с течением времени. На данном рисунке также приведено изменение вход­ной и выходной температуры газа. Температура пластины (1—4) быстро увеличивается, в то время как выходная температура смеси достигает рав­новесного значения за большое время. Это связано с инерционностью системы. Наблюдается повышенная температура газа в застойной зоне реактора (термопара 4).

В рамках ламинарного течения газовой смеси было рассчитано течение и теплообмен в элементе исследуемого пластинчатого реактора. Область решения включала пространство между двумя пла­стинами и области, занимаемые отверстиями. На входе в центральное отверстие каталитической пла­стины задавались начальный профиль скорости, а также равномерное поверхностное или объёмное тепловыделение на ней. Задавались параметры ра­бочей смеси и теплофизические параметры стенки, характерные для проведенного эксперимента. На нижней пластине задавались адиабатические гра-

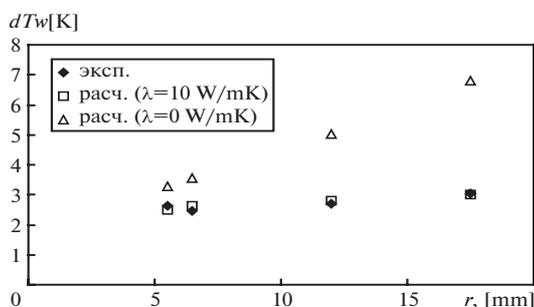


Рис. 6. Изменение температуры поверхности в экспе­рименте и в расчете для одинаковой мощности тепловы­деления с учетом теплопроводности стенок и без нее

ничные условия. В результате расчета было получе­но распределение температур каталитической по­верхности, которая приведена на рис. 5. Приве­денное поле температур рассчитано с учетом теплопро­водности стенки. Наблюдается слабое изменение температуры поверхности по радиусу каталитиче­ской пластины. На рис. 6 приведено прямое сравне­ние измеренных и рассчитанных изменений темпе­ратуры поверхности в точках измерения температу­ры поверхности. Здесь же приведены расчеты рас­пределения температуры поверхности при поверх­ностном выделении тепла для нетеплопроводной пластины. В этом случае изменение температуры поверхности существенно больше, что может не­благоприятно повлиять на степень конверсии и селективность продуктов реакции.

### 3. ИССЛЕДОВАНИЕ РЕАКЦИИ НЕПОЛНОГО ОКИСЛЕНИЯ МЕТАНА В СБОРКЕ МИКРОКАНАЛОВ

Схема экспериментального стенда для исследо­вания тепло- и массообмена при течении реаги­рующей смеси газов в микрохимическом реакторе представлена на рис. 7. Стенд включает в себя газо­вые магистрали для доставки рабочих газов (метана и кислорода или воздуха) из баллонов в микрохи­мический реактор, вентили, переключатели потоков газов, манометры для контроля давлений, газовые контроллеры для поддержания требуемых расходов рабочих газов, блок предварительного подогрева рабочей газовой смеси, рабочий участок. После химического превращения в рабочем участке обра­зовавшаяся смесь газов направляется в газовый хроматограф для определения компонентного со­става и в газовый счетчик для измерения объемного расхода. Рабочий участок стенда (микрохимический реактор) представляет собой микроканальную пла­стину с нанесенным катализатором, размещенную между толстостенными обкладками, оснащенными нагревательными элементами. В качестве активи­рующего покрытия использован платинородиевый катализатор на основе гамма-оксида алюминия и модифицирующих добавок. Для контроля темпера­туры поверхности реактора хромель-алюмелевые

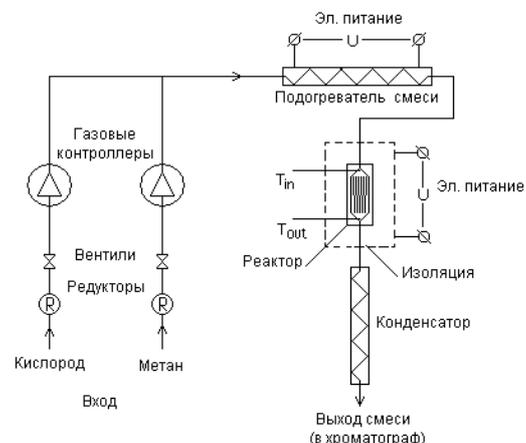


Рис. 7. Схема экспериментального стенда для исследования неполного окисления метана

термопары приварены к микроканальной пластине точечной сваркой. Микроканальная пластина имела 11 каналов длиной 40 мм и глубиной 1 мм. Опыты проведены при начальной температуре реактора около 800°C. Мольное соотношение реагирующих газов на входе в реактор составляло  $\text{CH}_4/\text{O}_2 = 2$ . Опыты проведены в диапазоне времен пребывания 16...110 мс.

Измерения распределения температуры реагирующей смеси газов по длине микроканала показали, что при малых временах пребывания смеси в реакторе ( $< 40$  мс) происходит её значительный разогрев вблизи входа в микроканалы, обусловленный протеканием экзотермической реакции полного окисления метана. На наличие этой реакции указывает также значительное увеличение концентрации двуокиси углерода и воды на выходе для времен пребывания меньше 40 мс. Данные по составу смеси и распределению её температуры по длине микроканалов показывают двухстадийность реакции неполного окисления метана, в особенности для малых времен пребывания. На начальном этапе происходит сжигание части метана с образованием паров воды и двуокиси углерода, и затем химическое превращение образовавшейся смеси с образованием водорода и окиси углерода.

В рамках одномерной модели химических превращений при кинетике положительной реакции первого порядка и кинетики реакции Лангмюра-Хеншеллуда получено аналитическое соотношение для степени химического превращения компонент смеси, учитывающее внешнее диффузионное торможение. Обработка экспериментальных данных по степени химического превращения метана для кинетики положительной реакции первого порядка показала, что величина константы скорости реакции плавно возрастает при уменьшении времени пребывания до 40 миллисекунд, что связано с ростом температуры в зоне реакции, и затем уменьшается при изменении характера химического превращения. Данные по зависимости константы скорости реакции от времени пребывания приведены на рис.8.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследование теплообмена при радиальном течении газа в дисковом щелевом теплообменнике-реакторе показало, что течение в зазоре между пластинами является сильно возмущенным, и коэффициенты теплоотдачи существенно зависят от расхода газа. Численные расчеты и эксперименты показали, что при наличии химических превращений с тепловыделением на стенках щелевого реактора, поле температур пластин может быть сильно неоднородным. При использовании пластин из композитного каталитически активного материала с теплопроводностью до 10 Вт/(м·К), температурные неоднородности существенно сглаживаются, и такие реакторы могут быть использованы для проведения химических превращений с высокой селективностью и степенью конверсии исходных продуктов.

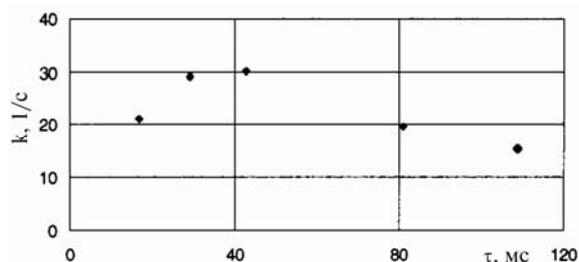


Рис. 8. Изменение величины константы скорости реакции в зависимости от времени пребывания

Исследование неполного окисления метана в среде кислорода в сборке микроканалов показало, что химическое превращение смеси газов протекает в две стадии. На первой стадии происходит реакция полного окисления метана и значительный разогрев реактора вблизи входа в микроканалы. На второй стадии происходят химические превращения образовавшейся смеси с образованием водорода и окиси углерода.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 05-08-65526), интеграционного проекта СО РАН №144 и программы Президиума РАН (проект 7.2).

## СПИСОК ОБОЗНАЧЕНИЙ

- $c_p$  — теплоемкость газа, Дж/(кг·К);
- $D$  — диаметр пластин, мм;
- $d$  — диаметр отверстий, мм;
- $h$  — зазор между пластинами, мм;
- $Nu$  — число Нуссельта;
- $Q$  — тепловая мощность, Вт;
- $S$  — поверхность пластин, м<sup>2</sup>;
- $T$  — температура, К;
- $V$  — приведенная скорость газа, м/с;
- $\nu$  — кинематическая вязкость газа, м<sup>2</sup>/с;
- $\lambda$  — теплопроводность газа, Вт/(м·К)

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Peng X.F., Wang B.X., Peterson G.P., Ma H.B. Experimental investigation of heat transfer in flat plates with rectangular microchannels // Intern. J. Heat Mass Transfer. 1995. Vol. 38. N 1. P. 127—137.
2. Adams M.T., Abdel-Khalik S.I., Jeter S.M., Qureshi Z.H. An experimental investigation of single-phase forced convection in microchannels // Intern. J. Heat Mass Transfer, 1998. Vol. 41. N 6-7. P. 851—857.
3. Rostami A., Saniei N., Mujumdar A.S. Liquid flow and heat transfer in microchannels: A review // Heat and Technology. 2000. Vol. 18. N 2. P. 59—68.
4. Новиков П.А., Любин Л.Я. Гидромеханика щелевых систем. Минск: Наука и техника, 1988. 344 с.
5. Savage S.B. // Trans. ASME. Ser. E. 1964. Vol. 86 (J. Appl. Mech. Vol. 31. N 4). P. 594—596.
6. Myers D., Krause T., Bae J.-M. and Pereira. Extending Abstracts. 2000 Fuel Cell Seminar. P. 280—283.
7. Кутателадзе С.С. Основы теории теплообмена. Новосибирск: Наука, 1970.
8. Bontemps A., Belghazi M. Measurements of single-phase pressure drop and heat transfer coefficient in micro and minichannels // Microscale Heat Transfer-Fundamentals and Applications in Biological and Micromechanical systems, Turkey, July 18-30, 2004. P. 3—4.