

ТЕПЛОМАССОБМЕН ПРИ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДАХ И ХИМИЧЕСКИХ ПРЕВРАЩЕНИЯХ В МИКРОКАНАЛЬНЫХ СИСТЕМАХ

АННОТАЦИЯ

Рассмотрены экспериментальные и теоретические исследования в области гидродинамики и тепломассопереноса при фазовых и химических превращениях в микроканальных реакторах-теплообменниках. Приведены данные по режимам газо- и парожидкостных течений, их структуре, данные по коэффициентам теплоотдачи при кипении в условиях вынужденного течения в стесненных условиях, модели тепло- и массообмена при фазовых переходах, результаты исследований в области химических превращений смесей газов в стесненных условиях при активировании реакции на стенках каналов.

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время постоянно увеличивается число исследований в области гидродинамики течений и тепломассообмена на микроуровне. Это связано с быстрым ростом технологических применений, которые требуют передачи больших тепловых потоков в ограниченном пространстве и объеме. Такие применения имеют широкий спектр, начиная от компактных испарителей конденсаторов энергетических и криогенных устройств до охлаждающих систем компьютерных процессоров. Важное применение микроканальные технологии находят в последнее время при разработке мобильных энергетических устройств водородной энергетики.

Несмотря на большое число работ в области исследования режимов течения и теплообмена при кипении и конденсации в трубах относительно большого диаметра, они не могут быть прямо использованы для течений в микро- и миниканалах. Это связано с тем, что в каналах малого размера капиллярные силы становятся преобладающими и определяют режимы течения и теплообмена. В работах [1-6] показано, что в отличие от кипения в трубах большого диаметра коэффициенты теплоотдачи при кипении в микроканалах в основном зависят от теплового потока и давления и слабо зависят от скорости течения и паросодержания. В работах [1-5,7] показано, что для перегревов стенки больше 6 градусов пузырьковое кипение преобладает и вклад конвективного испарения мал. В противоречии с этим в работах [8-11] показано, что для вынужденного течения в микроканалах пузырьковое кипение не является определяющим механизмом переноса тепла. Обзор работ российских ученых по исследованию кипения жидкости в каналах малого размера сделан в [12]. Таким образом, в настоящее время имеются в значительной степени противоре-

чивые экспериментальные данные по режимам теплообмена кипении в условиях вынужденной конвекции в мини- и микроканалах, которые могут быть объяснены только в рамках совместного рассмотрения режимов течения и теплообмена.

Исследования тепломассообмена при химических превращениях в микроканальных системах выполнены в работах [13,14]. Интерес к этой задаче связан с возможностью создания микрохимических реакторов, работающих при малых временах пребывания реагирующей смеси. Применение высокоэффективных катализаторов позволило в [13] экспериментально получить высокую степень конверсии метана в синтез-газ при временах контакта до 50 миллисекунд. Малые размеры каналов в значительной степени снимают внешние диффузионные ограничения на скорость реакции, активированной на стенках каналов. Расчеты гидродинамики течения и массообмена в микротрубке на примере парциальном окислении метана выполнены в [14]. Для расчета химической реакции использована сложная иерархия реакций на стенке каналов. Полученные результаты указывают на одностадийный характер неполного окисления метана в синтез-газ. Вместе с тем в ряде работ такая точка зрения подвергается сомнению и рассматривается возможность двухстадийной реакции с первоначальным каталитическим горением метана. Вопрос о кинетике реакции в микроканалах является принципиальным для развития теории химических превращений в стесненных условиях, так как реакция проходит в условиях интенсивного внешнего массообмена и его скорость может в значительной степени изменить характер протекающей результирующей реакции.

2. КАПИЛЛЯРНАЯ ГИДРОДИНАМИКА ТЕЧЕНИЙ В КАНАЛАХ МАЛОГО РАЗМЕРА

В настоящее время имеется весьма ограниченная экспериментальная информация о роли капиллярных сил при течении двухфазных смесей в каналах сложной формы с поперечным размером меньше капиллярной постоянной $d_c = [2\sigma/(\rho_L - \rho_G)g]^{1/2}$. Формы течения смесей в таких условиях весьма разнообразны из-за существенного проявления капиллярных сил, изменяющих режим течения. Для каналов малого размера типичными режимами течения являются пузырьковый с мелкими пузырями, режим с тейлоровскими пузырями-снарядами, ячеистый режим течения и кольцевой. Типичные режимы

восходящего течения воды и воздуха в кольцевом канале с зазором 680 мкм показаны на рис. 1. Режим с мелкими пузырями существует при высокой скорости жидкости, когда турбулентные пульсации в

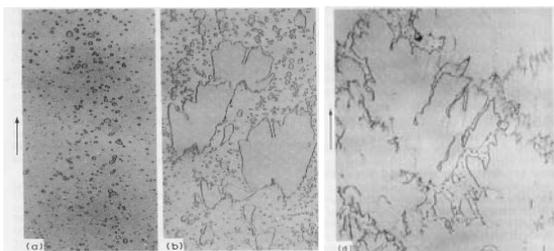


Рис. 1. Типичные режимы течения в узкой щели

потоке разрушают крупные пузыри [15]. При малых приведенных скоростях смеси мелкие пузыри объединяются и устойчивым является режим с тейлоровскими пузырями. При приведенных скоростях воздуха больше 10 м/с волны на противоположных сторонах канала смыкаются, и в потоке возникают ячеистый режим течения с жидкими перемычками, стабилизированными капиллярными силами.

Для течений в прямоугольных каналах с одним из размеров меньше капиллярной постоянной определяющим является процесс стягивания жидкости в углы канала. На рис. 2 показано гантелеобразное распределение толщины плёнки по периметру канала при опускном течении керосина, полученное с помощью лазерного ножа в [16]. Жидкость двигается в основном, в углах канала, и толщина пленки на сторонах канала мала. При увеличении скорости пара происходит перераспределение расходов жидкости на сторонах канала и в его углах.

В [16,17] построена теория кольцевого течения в прямоугольном канале с прямыми и искривлёнными стенками, основанная на выделении двух зон течения: течения в углу канала, ограниченного межфазным мениском, и пленочного течения на стенках канала; и сшивки решений в этих зонах с учетом условий сопряжения. В приближении тонкого слоя уравнения Навье-Стокса для пленочного течения, с учётом уравнения баланса массы, кинематического и динамического условий на поверхности жидкости и условия прилипания на стенке, сведены к дифференциальному уравнению четвертого порядка для локальной толщины искривлённой плёнки жидкости. Это уравнение, совместно с уравнением переноса тепла в жидкости и стенке канала, позволяет рассчитать как изотермические кольцевые течения, так и течения с фазовым переходом. Сопоставление результатов расчета с экспериментом показано на рис. 2.

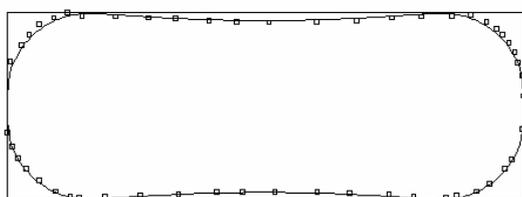


Рис. 2. Межфазная поверхность в канале 2×7 мм на расстоянии 0.09м от входа, $Re_L = 14$, линия - расчёт

На рис. 3 приведены результаты расчёта профиля поверхности при испарении жидкости в канале малого размера. Поперечное течение, вызванное капиллярными силами, вызывает разрыв плёнки и

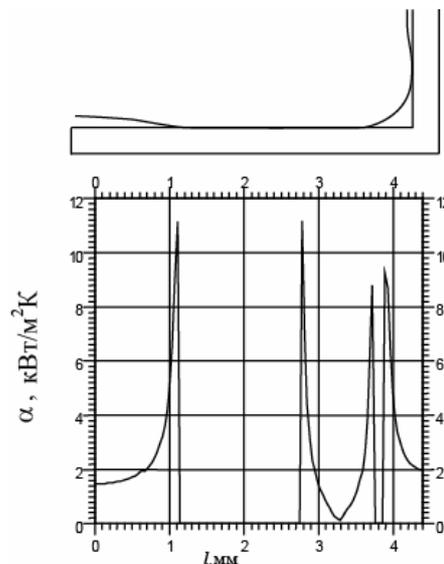


Рис. 3. Межфазная поверхность и распределение локального теплового потока при испарении

образование линии смачивания в окрестности сухого пятна. Перенос тепла в окрестности линии смачивания вызывает интенсивное испарение жидкости и спонтанное расширение сухого пятна. На примере испарения ограниченной по ширине плёнки жидкости – струйки R11 в среде собственного пара показано, что перенос тепла в окрестности линии смачивания вызывает стягивание струйки на нагретой стенке и установление теплового контактного угла. Величина теплового контактного угла достигает 30 градусов при температурном напоре 0.6С [18,19].

Разрыв пленки жидкости не приводит к значительному ухудшению теплоотдачи при испарении, так как высокие значения теплового потока в окрестности контактной линии способствуют общему высокому теплопереносу от стенки. В канале с искривлёнными стенками образование сухих пятен стимулируется кривизной стенки канала, но это не приводит к существенному изменению общего теплопереноса при испарении.

3. ТЕПЛОМАССОБМЕН ПРИ КИПЕНИИ В МИКРОКАНАЛАХ

Теплообмен при кипении в микро- и миниканалах имеет ряд особенностей, связанных с режимами течения. В режиме с мелкими пузырями (рис.1а) блокирования сечения канала паровой фазой не происходит и закономерности теплоотдачи при кипении должны быть близки к известным.

Теплообмен при кипении R318С при массовых скоростях от 200 с до 900 кг/(м²·с) и давлении до 8 бар был изучен в горизонтальном кольцевом канале длиной 0.4 м с зазором 950 мкм и внутренней обогреваемой стенкой (нержавеющая сталь), обогреваем-

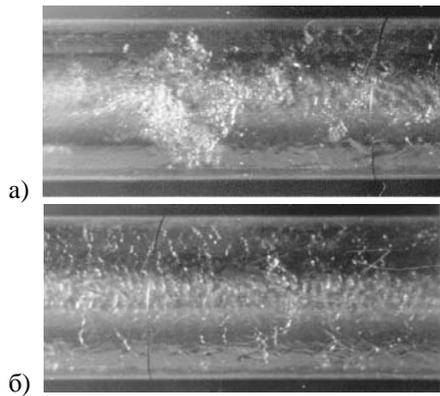


Рис. 4. Режимы кипения при (a) $x = 0.34$, (b) $x = 0.51$

мой электрическим током [20,21]. Внешняя стенка была прозрачной для визуализации режима течения. На рис.4 приведены основные режимы течения при кипении в условиях вынужденного течения. При массовом паросодержании меньше 0.3 происходит интенсивное кипение жидкости в пробках. При паросодержании больше 0.4 жидкие пробки исчезают, и кипение имеет место только в гребнях крупных волн. Обработка экспериментальных данных по теплообмену при кипении показала, что при массовом паросодержании меньше 0.3 они хорошо обобщаются известной зависимостью Лиу и Винтертона [22] для кипения в трубах большого диаметра при условии, что пузырьковое кипение рассчитывается по соответствующим зависимостям для R318С. Зависимость Клименко [23] дает существенное занижение коэффициента теплоотдачи по сравнению с экспериментом. Сравнение экспериментальных данных с расчетом для паросодержаний меньше 0.3 приведено на рис 5.

При паросодержании больше 0.3 наблюдается подавление кипения и разогрев стенки до температур, соответствующих теплообмену при испарении пленки на стенке.

Принципиально другой характер теплообмена наблюдается при малом давлении в рабочем участке

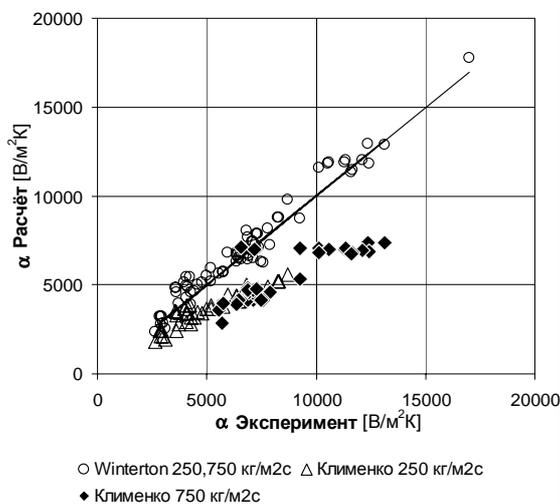


Рис. 5. Расчётные значения теплоотдачи от экспериментальных для кипения RC318 в кольцевом канале

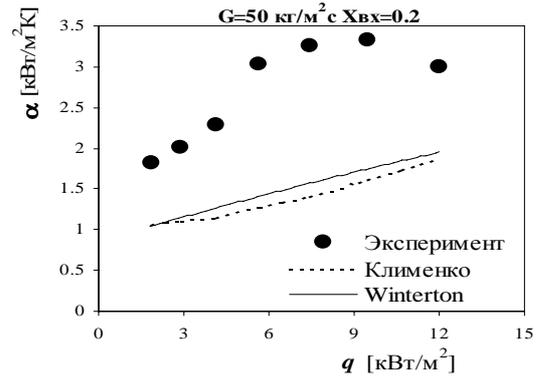


Рис. 6. Измеренные и рассчитанные коэффициенты теплоотдачи при кипении R21 в прямоугольном канале при массовой скорости 50 кг/м²с

и малых массовых скоростях на входе в участок. На рис. 6 приведены данные по зависимости локального коэффициента теплоотдачи от плотности теплового потока при кипении R21 в условиях вынужденного течения в прямоугольном канале 1.6x6.3 мм с длиной обогреваемого участка 290 мм [24]. Толщина стенки канала 0.1 мм. Опыты проведены при давлении в рабочем участке 2,5 бар и массовой скорости жидкости 50 кг/(м²·с). Расположенный на входе в канал парогенератор позволял получать заданное паросодержание на входе в канал. Экспериментальные данные по коэффициентам теплоотдачи лежат существенно выше известных зависимостей [22,23]. Для корректного расчета коэффициента теплоотдачи при малых массовых скоростях необходимо учитывать интенсификацию теплообмена в стесненных условиях, в особенности для тепловых потоков больше 2 кВт/м².

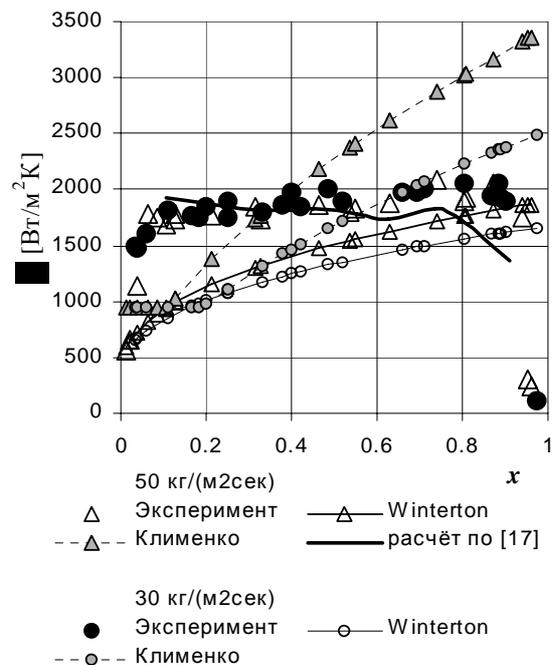


Рис. 7. Коэффициент теплоотдачи при тепловом напоре от 0.9 до 1.4⁰С при кипении R21 в сборке каналов

При малых тепловых потоках пузырьковое кипение при вынужденном течении жидкости в миниканале может быть подавлено испарением тонких слоев жидкости. На рис. 7 приведены опытные данные по коэффициентам теплоотдачи при восходящем течении R21 в сборке миниканалов с гидравлическим диаметром 1.8 мм при массовой скорости 30 и 50 кг/(м²·с) в зависимости от массового паросодержания в точке измерения температуры стенки [25]. Высота каналов равна 6.7 мм, давление равно 2 бар. Перегрев стенки изменялся в области от 0.9 до 1.4 °С что соответствовало плотности теплового потока порядка 2 кВт/м². В данных условиях коэффициент теплоотдачи слабо зависит от массового паросодержания и практически не зависит от теплового потока. Экспериментальные данные на рис. 7 близки к расчету локального коэффициента теплоотдачи по модели испарения жидкости [16,17]. При увеличении массового паросодержания размер сухих пятен на длинных сторонах каналов увеличивается, но высокие значения тепловых потоков в окрестности контактной линии жидкость-пар-стенка способствуют общему высокому теплопереносу от стенки.

4. ТЕПЛОМАССОБМЕН ПРИ ХИМИЧЕСКИХ ПРЕВРАЩЕНИЯХ В МИКРОКАНАЛАХ

Тепломассообмен при химических превращениях изучен в сборке микроканалов из нержавеющей стали при температуре порядка 800 °С. Рассматривалась реакция неполного окисления метана в среде кислорода с образованием синтез-газа. Анализ состава продуктов реакции проводился с использованием газового хроматографа. Рабочий участок (микрохимический реактор) представляет собой микроканальную пластину с нанесенным катализатором. В качестве активирующего покрытия использован платинородиевый катализатор на основе гамма-оксида алюминия и модифицирующих добавок. Микроканальная пластина имела 11 микроканалов длиной 40 мм и глубиной 1 мм. Мольное соотношение реагирующих газов на входе в реактор составляло $\text{CH}_4/\text{O}_2=2$.

Измерения распределения температуры реагирующей смеси газов по длине микроканала показали, что при малых временах пребывания смеси в реакторе (< 40 мсек) происходит её значительный разогрев вблизи входа в микроканалы, обусловленный протеканием экзотермической реакции неполного окисления метана. На наличие этой реакции указывает также значительное увеличение концентрации двуокиси углерода и воды на выходе для времен пребывания меньше 40 мсек. Данные по составу смеси и распределению её температуры по длине микроканалов показывают двухстадийность реакции неполного окисления метана. 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 кинетике 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 мсек., что связано с ростом температуры в зоне реакции, и затем уменьшается при изменении характера химического превращения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Фазовые переходы в микроканальных системах происходят в условиях определяющего влияния капиллярных сил на режимы течения и массопереноса. Полученные данные по кипению фреонов R318C и R21 в условиях вынужденного течения и исследования режимов газожидкостного течения в стесненных условиях показывают их большое разнообразие. Это течение с мелкими пузырьками, характерное для высоких массовых скоростей потока, режим с Тэйлоровскими пузырями, блокирующими проходное сечение канала, ячеистое течение со стабилизированными капиллярными силами перемычками, в которых происходит интенсивное кипение жидкости при высоких тепловых потоках, и кольцевое течение с неравномерно распределенной по периметру пленкой жидкости. При массовых скоростях больше 200 кг/(м²·с) (режим с мелкими пузырями) и массовых паросодержаниях меньше 0.3 коэффициенты теплоотдачи при кипении могут быть рассчитаны по зависимости Лиу-Винтертона при использовании коэффициентов теплоотдачи при кипении в условиях естественной конвекции, соответствующих кипящей жидкости. При массовых скоростях меньше 50 кг/(м²·с), влияние капиллярных сил становится существенным, и зависимость Лиу-Винтертона при кипении в прямоугольном канале дает заниженные значения коэффициентов теплоотдачи. Это связано с деформацией межфазной поверхности капиллярными силами и значительным вкладом теплообмена при испарении сверхтонких пленок жидкости в интегральный теплообмен. Вклад теплообмена при испарении сверхтонких искривленных пленок жидкости становится определяющим в области малых массовых скоростей и тепловых потоков меньше 2 кВт/м².

Тепломассообмен при химическом превращении смеси газов в микроканальных системах с активированием реакции на стенках каналов также происходит в стесненных условиях. Тонкие диффузионные и пограничные слои при малом размере каналов

определяют высокие значения коэффициентов тепло и массоотдачи и практически снимают внешние диффузионные ограничения на скорость реакции. Для многостадийных реакций в этих условиях последовательность реакций может регулироваться для получения необходимого состава продуктов реакции и высокой степени конверсии начальной смеси. Проведенные опыты определили диапазон времен пребывания реагирующей смеси в реакторе, при котором достигается высокая степень конверсии метана при его неполном окислении в синтез-газ с высоким содержанием водорода, при длине реактора до 4 см и температурах порядка 800 °С. Это позволяет создать высокоэффективный реактор для получения водорода из природного газа на основе микроканальной технологии.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 05-08-65526).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Lazarek & Blake**, Evaporative heat transfer, pressure drop and critical heat flux in small vertical tube with R-113, *International Journal Heat and Mass Transfer*. 1982. 25. 7. P. 945-960.
2. **Wambsganss, M.W., France, D.M., Jendrzeczyk, J.A., and Train, T.N.**, Boiling heat transfer in a horizontal small-diameter tube, *Journal of Heat Transfer*. 1993. 115. P. 963-972.
3. **Train, T.N., Wambsganss, M.W. and France, D. M.**, Small Circular- and a Rectangular Channel Boiling with Two Refrigerants, *International Journal Multiphase Flow*. 1996. 22. P. 485-498.
4. **Tran, T.N., Wambsganss, M.W., Chyu, M.C. and France, D.M.**, A Correlation for Nucleate Flow Boiling in a Small Channel, *Proc. Int. Conf. On Compact Heat Exchangers for Process Industries*, 1997. P. 291-304.
5. **Peng, X. and Wang, B.**, Forced convection and flow boiling heat transfer in flat plates with rectangular microchannels. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 1993. 36. 14. P. 3421-3427.
6. **Kuznetsov, V.V., Shamirzaev, A.S.**, Two-phase flow pattern and boiling heat transfer in non-circular channel with a small gap, *Proc. of Two-Phase Flow Modeling and Experimentation*, 1999. Pisa. 1. P. 249-253.
7. **Mertz, R., Wein, A., Groll**, Experimental investigation of flow boiling heat transfer in narrow channels, *Calore Technologia*, 1996. 14. 2. P. 47-54.
8. **Robertson, J.M.**, Boiling Heat Transfer with Liquid Nitrogen in Braised-Aluminum Plate-Fin Heat Exchangers, *AIChE Symposium Series 75*, 1979. 189. P. 151-164.
9. **Robertson, J.M., Lovergrove, P.C.**, Boiling heat transfer with Freon 11 in brazed aluminum Plate-Fin Heat Exchangers, *J. of Heat Transfer*, 1983. P. 105.
10. **Robertson, J.M.**, The correlation of boiling coefficients in Plate-Fin Heat Exchanger passages with a film flow model, in 7th Int Heat Transfer Conference Munich, 1982. P. 341-345.
11. **Wadekar, V.V.**, Flow boiling of heptane in a plate-fin heat exchanger passage, *Compact Heat Exchangers for the Process and Power Industries*, ASME HTD, 1992. 201. P. 1-6.
12. **Г.Ф. Смирнов, А.Д. Цой.**, Теплообмен при парообразовании в капиллярах и капиллярно-пористых структурах, М.: Издательство МЭИ, 1999. 439 с.
13. **A.Y. Tonkovich, J.L. Zilka, M.R. Powell, C.J. Call**, in: *Proceedings of the 2nd International Conference on Microreaction Technology*. New York, AIChE, 1998. 45.
14. **Deutschmann and L.D. Schmidt**, Modelling of Partial Oxidation of Methane in a Short Contact Time Reactor, *AIChE J.*, 1998. 44. P. 2465.
15. **Nakoryakov, V.E., Kuznetsov, V.V., Vitovsky, O.V.**, Experimental Investigation of Upward Gas-Liquid Flow in a Vertical Narrow Annulus, *Int. Journal of Multiphase Flow*, 1992, 18. 3. P. 313-326.
16. **Kuznetsov, V.V., Safonov, S.A., Sunder, S., Vitovsky, O.V.**, Capillary Controlled Two-Phase Flow in Rectangular Channel, *Proc. Int. Conf. on Compact Heat Exchangers for Process Industries*, Utah USA. New York, 1997. P. 291-303.
17. **Kuznetsov V.V. Safonov S.A., Shamirzaev A.S., Houghton P.A., Sunder S.**, Two-phase flow pattern and evaporating heat transfer in a vertical rectangular channel, *Compact Heat Exchangers for the Process Industries*, *Proc. Intern. Conf.*, Banf, Canada, 1999. P. 311-320.
18. **Кузнецов В.В, Сафонов С.А., Витовский О.В.**, Теплообмен при испарении жидкости в окрестности контактной линии жидкость-пар-стенка, Тр. Третьей Российской Национальной конференции по теплообмену. Москва, 2002. Т. 4, С. 284-287.
19. **Кузнецов В.В, Сафонов С.А., Витовский О.В.**, Теплообмен при испарении жидкости в окрестности контактной линии жидкость-пар-стенка, Доклад XXVI Сибирского теплофизического семинара. 2002, Новосибирск .
20. **Kuznetsov V.V. Kim O.S., Shamirzaev A.S.**, Flow boiling heat transfer in annular channel with a small gap, *Russian Journal of Engineering Thermophysics*. 1999. 9. 4. P. 273-283.
21. **Kuznetsov, V.V., Shamirzaev, A.S.**, Flow boiling heat transfer in minichannels, *Proc. of Eurotherm Seminar No 72: Thermodynamics Heat and Mass Transfer of Refrigeration Machines and Heat Pumps*. Spain, 2003.
22. **Z. Liu and R.H.S. Winterton**, A general correlation for saturated and subcooled flow boiling in tubes and annuli, based on a nucleate pool boiling equation, *Int. J. of Heat and Mass Transfer*. 1991. 1.34. P. 2759-2766.
23. **V.V. Klimenko**, A generalized correlation for two-phase forced flow heat transfer – second assessment, *Int. J. of Heat and Mass Transfer*. 1990. 33. P. 2073-2088.
24. **V. V. Kuznetsov, A.S. Shamirzaev**, Boiling heat transfer for freon R21 in rectangular minichannel, *Proc. of Forth International Conference on Nanochannels, Microchannels and Minichannels*, №ICNMM2006-96096, Limerick, Ireland, Editor S.G. Kandlikar, 2006.
25. **V. V. Kuznetsov, S.V. Dimov, A.S. Shamirzaev, P.A. Houghton, S. Sunder**, Upflow Boiling and Condensation in rectangular Minichannels, *Proc. of First International Conference on Microchannels and Minichannels*, Rochester, New York, Editor S.G. Kandlikar, 2003. P. 683-689.