

一种环型放射状流化床膜制氢反应器 传热特性研究

费广平, 彭 昂, 解东来, 李瑞军

(华南理工大学传热强化与过程节能教育部重点实验室, 广东 广州 510640)

摘要:针对天然气水蒸气重整制氢的工业应用,提出了一种膜组件呈环型放射状排列的新型流化床膜反应器的概念设计。该反应器含有一个重整/膜分离区(在下部)及一个氧化区(在上部)。搭建了该反应器的冷态模型,在冷态模型中,膜组件上部的氧化区安装了 3 支管型电加热器以模拟实际反应器中引入空气进行氧化反应的热源。实验研究了采取不同加热方式时,不同气速下床层的温度分布,实验结果为该种新型反应器的工程设计和模拟提供了依据。

关键词:氢气;钯膜;流化床;传热

中图分类号:TQ051.13

文献标识码:A

文章编号:0253-4320(2009)09-0064-04

Study on cold model heat transfer in an annular fluidized bed reactor for hydrogen production with intensive membrane panels

FEI Guang-ping, PENG Ang, XIE Dong-lai, LI Rui-jun

(Key Laboratory of Enhanced Heat Transfer & Energy Conservation, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China)

Abstract: A novel annular fluidized bed reactor with intensive membrane panels is proposed for pure hydrogen production from autothermal steam methane reforming and in-situ hydrogen separation with palladium membrane panels. The reactor has an integrated reforming and hydrogen separation zone at the bottom and an oxidization zone on the top part of the reactor. Three electrical heaters are fabricated and installed in the oxidation zone of the cold model to simulate the introduction of air as heating source. The bed temperature distribution is measured under the various heating modes and superficial gas velocities. The cold model test results can provide basis for industrial design and simulation for such type of reactors.

Key words: hydrogen; palladium membrane; fluidized bed; heat transfer

氢能作为一种清洁、高效、安全、可持续的能源,被视为 21 世纪最具发展潜力的清洁能源。然而要利用氢燃料电池为各种分布式能源系统提供动力,首先必须具有来源广泛、可靠且廉价的氢源。目前世界上 90% 以上的氢气都是通过大规模固定床天然气/水蒸气重整和部分氧化的方式产生,用变压吸附进行提纯。该生产方式并不适于分布式中小规模氢气的生产。为满足分散式氢源的需要,新型氢气生产技术纷纷涌现,流化床膜反应器(FBMR)由于其良好的气固接触效率,非常高的壁-床层换热系数,一步法生产氢气的方式等诸多优点而逐渐受到人们关注^[1]。

在流化床膜反应器中,需要在有限的反应器空间中安装足够多的膜,且尽量避免影响反应器的流态化品质。为此,不同的研究者研发了不同的反应

器型式,如内循环流化床膜反应器^[2]、二维流化床膜反应器^[3]、快速流化床膜反应器^[4]等。相关研究团队在 FBMR 的自热反应、FBMR 的放大、反应模型、重烃的水蒸气重整、CO₂ 吸附耦合等方面做了大量的研发,并有工业示范装置成功运行^[5]。

笔者所在课题组提出了一种钯膜组件呈环型放射状排列的新型流化床膜反应器的概念设计,本文中建立了一个冷态模型,实验研究了该反应器内的传热特性,为该类型反应器的工程设计和模拟提供依据。

1 环型放射状流化床膜反应器的概念设计及挑战

该反应器主要部件包括外管、内管、钯膜组件、尾气过滤器、进料布风板、风箱和空气分布器,其概

收稿日期:2009-05-15

基金项目:国家高技术研究发展计划项目(2006AA05Z125);国家自然科学基金项目(20876054)

作者简介:费广平(1984-),男,硕士生;解东来(1970-),男,博士,副教授,主要从事新型制氢工艺研究,通讯联系人,dlxie@scut.edu.cn。

念设计如图1所示(括号中标注的为冷态模型中的物料),反应器横截面如图2所示。

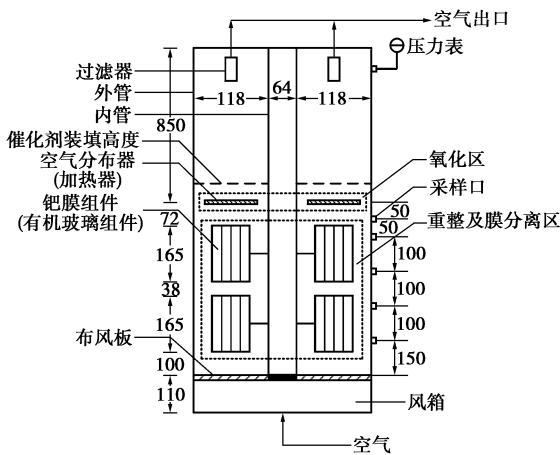


图1 环型流化床膜反应器概念设计及冷态模型结构

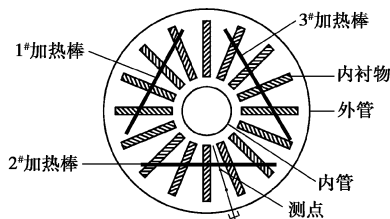


图2 环型流化床膜反应器横截面及测温点位置

反应空间组成为由内、外2个管形成的环型区域,设计内管的目的是减小反应器单位体积内的横截面积,使反应气体在反应器内的流速超过催化剂颗粒的最小流化速度,且有一定的富余量;同时使单位体积的反应器容积内可以安装足够的膜表面积。呈放射状排列的钯膜组件安装于内管和外管之间的环型空间,形成反应器的重整及膜分离区域。该种排列方式的设计意图是使组件对流化床的流态化效果以及流化床与壁的传热的影响降至最低。空气分布器安装于钯膜组件上方,形成反应器的氧化区。催化剂装填在内管和外管之间的环型空间区域,覆盖空气分布器。各钯膜组件通过汇流管相连,实际反应时,将渗透到钯膜组件内部的纯氢气通道内的氢气通过汇流管引出。反应器其他细节可参考文献[6]。

实现上述概念设计意图的挑战之一是对该种内含密集内衬物的流化床流体力学及传热特性的理解。在该反应器的设计理念中,在流化床膜反应器的上部床层通入空气进行氧化反应,为反应过程提供热量,但需要热量的水蒸气重整反应却在下部的重整区,这就依靠流化床中的催化剂将上部的热量带到下部来。所以,正确理解颗粒在氧化区和重整

区的运动,理解氧化区与重整区的传热特性,对于正确设计该种流化床反应器,预测氧化区与重整区的温度分布是很重要的。针对该问题,建立了一个流化床膜反应器的冷态模型,实验研究该流化床膜反应器的传热特性。

2 实验装置及检测方法

2.1 环型放射状流化床膜反应器冷态模型

根据流化床放大中的无因次准则计算,采用平均粒径为 $65 \mu\text{m}$ 的 FCC 催化剂作为冷态模型中的固态颗粒模拟实际反应器中的镍基催化剂,空气作为流化气体模拟实际反应器中的反应气体——天然气和水蒸气,氮气模拟实际反应器中的空气,详细计算可参考文献[7]。冷态模型结构尺寸如图1所示。为模拟实际反应器中引入空气与合成气进行氧化反应的热源,设计加工了3支管型电加热器,每支电加热器加热功率为300 W,直径7 mm,长150 mm,安装于膜组件上方720 mm处,水平安装位置如图2所示。3支电加热器可分别控制其工作状态(加热或不加热)。实验中测试了1#电加热器单独加热及3支电加热器同时加热时的床层温度分布。

冷态模型中采用 $16.5 \text{ cm} \times 7.6 \text{ cm} \times 0.63 \text{ cm}$ 的有机玻璃板模拟实际反应器中的钯膜组件,分上下2排,每排16个(共安装32个),绕内管呈环型放射状排列。

2.2 实验操作

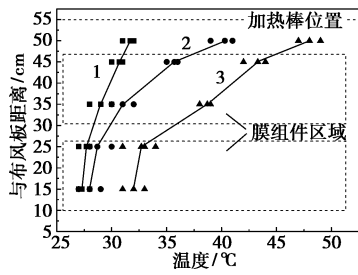
实验采用铂电阻测温,热电阻通过检测口伸入冷模内,探头伸入冷态模型的深度可以调整,实验每次共检测15个点的温度值,根据与外管内壁径向距离从小到大分为3组,距离分别为3、6、9 cm,3组点轴向分布位置相同,如图1所示。每次实验保持加热管加热时间在30 min,完成后继续使用压缩机吹扫,待床层冷却后再进行实验,每组数据重复检测3次。

3 结果与讨论

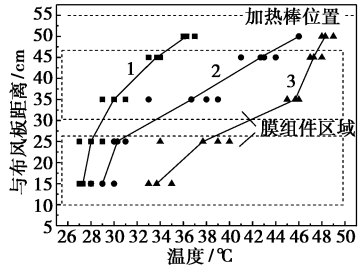
3.1 1#电加热器单独加热

在采用1#加热器单支加热情况下,检测空气流速在3、5、8、11 cm/s下,床层内的温度分布情况,结果如图3所示。

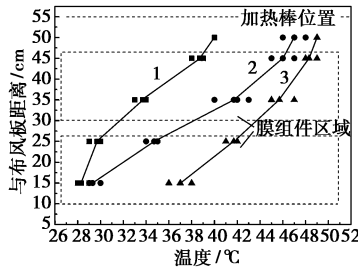
如图3所示,在流速为3 cm/s时,床层靠近上部加热器的温度较高,但横向温差较大,随着与加热器距离的增加,温度下降明显,床层下方的温度很低,这是由于流速较低,流化的不够充分,热量并未



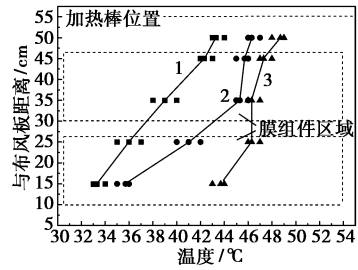
(a) $u = 3 \text{ cm/s}$



(b) $u = 5 \text{ cm/s}$



(c) $u = 8 \text{ cm/s}$



(d) $u = 11 \text{ cm/s}$

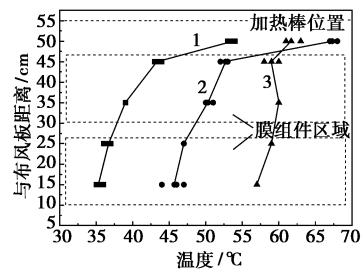
距反应器外壁距离/cm:1—3;2—8;3—9

图 3 1# 电加热器加热时冷态模型内的温度分布

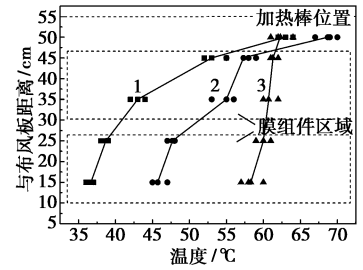
充分传递到床层下方。随着空气流速的增大,曲线横向上温差有所缩小,但纵向温度下降趋势仍然明显。在流速达到 11 cm/s 后,距反应器外壁最远的曲线,纵向已基本保持一致,同一高度上横向温度的变化存在一定规律,即与外管的横向距离越大,温度越高,这可能由于靠近内管流化质量较好,热量传递的效果也更好。

3.2 三加热器均匀加热

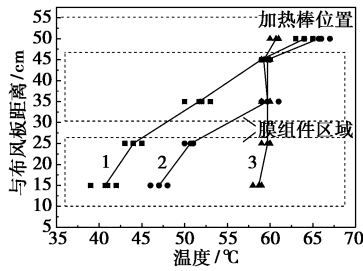
采用 3 根电加热器同时加热,检测空气流速在 3、5、8、11 cm/s 时床层内的温度分布,结果如图 4 所示。



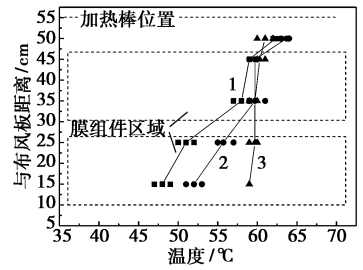
(a) $u = 3 \text{ cm/s}$



(b) $u = 5 \text{ cm/s}$



(c) $u = 8 \text{ cm/s}$



(d) $u = 11 \text{ cm/s}$

距反应器外壁距离/cm:1—3;2—6;3—9

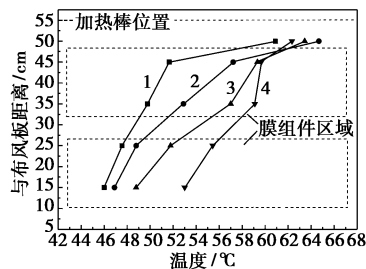
图 4 均匀加热时冷态模型内的温度分布

如图 4 所示,在采用均匀加热的方式时,同一流速下,靠近内管一侧的温度明显大于外管一侧温度,这与单加热器时热传递性一致,分析原因是由于流化床的内循环作用,使得气泡的横向分布不均匀,在中部出现的频率比在两边出现的频率高,气泡上升时尾涡将携带底部颗粒向上运动,进行热交换,所以靠近内管的温度较高^[8],另外密集内构件的安装对气泡间相互扰动、相互合并的横向热量传递也有部分影响。同时可以看出,随着流速的增大,靠近外管的点温度逐渐与靠近内管的相接近,横向的温差逐渐缩小,在达到 11 cm/s 时,在第 1 个膜组件区域,3

条曲线基本重合,纵向上温降也仅为 $1\sim 2^{\circ}\text{C}$,这是因为随着流速的增加,气泡的数量和速度都在增加,流化床内气固混合加剧,提高了床层内的热量传递效果,较大流速下密集内构件有利于破碎床层内的大气泡,提高床层横向的温度均匀性。但布风板上方 $25\sim 35\text{cm}$ 处温度变化较大,结合冷模设计图分析, 25cm 处的点和 35cm 处的点中间存在一片空缺地带,为上、下2组内衬物安装时中间留出较大空隙,该空隙影响了内循环过程,床层上部被加热的固体颗粒的回流,所以导致床层下部第2个膜组件区域内的温度偏低。

对比图3采用单加热管的方式,采用3支加热器均匀供热时,床层的均温较高,同时在较高流速下横向的温差也较小。

图5为均匀加热时,不同流速下冷模内的平均温度分布。从图5中可以看出,随着流速的增大,床层温度也逐渐上升,所以流速的增大有利于纵向的热量传递。



流速/ $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$:1—3;2—5;3—8;4—11

图5 均匀加热时冷态模型内的平均温度分布

4 结论

本文提出了一种膜组件呈环型放射状排列的新型流化床膜反应器的概念设计。建立了该反应器的冷态模型,在冷态模型中膜组件上部设计安装加热器,研究在采用不同加热方式时,不同流化气速下床

层的传热特性,结果表明:

(1)采用单/多加热器加热时,横向上床层均存在一定的温差,靠近内管处床层的温度较高,纵向上随着与加热器距离的增加,温度下降明显。对比采用单根加热管的供热方式,采用多加热管均匀加热时,床层的均温较高,在相同流速下横向的温差也较小。

(2)增大气体的流速,可以提高热量径向和纵向的传递,减小床层的温差,因此实际反应时,应考虑在较高流速下进行。

(3)2块膜组件的结合区域,会影响内循环过程中床层上部被加热的固体颗粒的回流,实际反应器设计时应尽量避免上、下膜组件之间存在较大的距离。

参考文献

- [1] 解东来,费广平,王卫星.分布式中小规模天然气制氢的工业研发进展[J].天然气化工,2008,33(2):63-66.
- [2] Xie D, Grace J R, Lim C J. Development of an internally circulating fluidized bed membrane reactor for hydrogen production from natural gas [J]. Journal of Wuhan University of Technology, 2006, 28(165): 252-256.
- [3] 解东来, Adris A M. 天然气自重整模块化流化床膜反应器的测试[J]. 太阳能学报, 2009, 30(5): 704-707.
- [4] Chen Z, Yan Y, Elnashaie S S E H. Hydrogen production and carbon formation during the steam reforming of heptane in a novel circulating fluidized bed membrane reformer [J]. Industrial and Engineering Chemistry Research, 2004, 43: 1323-1333.
- [5] Chen Z, Grace J R, Lim C J, et al. Experimental studies of pure hydrogen production in a commercialized fluidized-bed membrane reactor with SMR and ATR catalysts [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2007, 32: 2359-2366.
- [6] 华南理工大学. 一种环型放射状排列的流化床膜反应器: 中国, 200710031742.0 [P]. 2008-05-21.
- [7] Boyd T, Grace J R, Lim C J, et al. Cold modelling of an internally circulating fluidized bed membrane reactor [J]. International Journal of Chemical Reactor Engineering, 2007, 5: A26.
- [8] 周亚明, 沈湘林. 气固流化床内颗粒的内循环特性的研究 [J]. 热能动力工程, 2000, 15(85): 12-15. ■

中法建筑节能研讨会即将举行

第三届中法建筑节能研讨会将于2009年10月28日至11月4日在香港、台北、杭州、武汉和北京举行。此次研讨会是由法国驻华使馆商务处与香港贸发局、台北市政府、杭州思诺博会展服务公司、武汉市政府、北京住宅产业化促进中心合作举办的。

香港研讨会将与国际环保博览会 (<http://ecoexpoasia.hktdc.com/>) 同期举行。杭州研讨会也将与2009中国(杭

州)国际循环经济产业博览会 (<http://www.ecsef-hz.com/en/>) 同期举行。

此次研讨会将介绍中法两国建筑节能的情况,以及法国公司及其节能产品。前几届研讨会曾邀请了30多位专家及专业人士前来介绍其在该领域的专业知识以及在大中国区的丰富经历。(张玉涛)