

**B.K. Lukashov<sup>a</sup>, S.M. Romanko<sup>a</sup>, V.I. Sereda<sup>a</sup>, E.V. Kostyuchenko<sup>b</sup>**

## ТЕПЛОПЕРЕНОС ПРИ КОНЦЕНТРИРОВАНИИ РАСТВОРА СЕРНОЙ КИСЛОТЫ ИСПАРЕНИЕМ В ПОТОК НЕЙТРАЛЬНОГО ГАЗА

<sup>a</sup> Шосткинский институт Сумского государственного университета

<sup>b</sup> Сумский государственный университет

На основании приближенных физических представлений о теплопереносе при концентрировании раствора серной кислоты испарением в поток инертного (нейтрального) газа с внешним нагревом раствора разработана математическая модель, которая учитывает, наряду с потоком теплоты, передаваемой в газовую fazу с параметрами компонентов раствора, поток теплоты, возникающий в результате теплообмена между раствором кислоты и газовой fazой. При математическом описания теплопереноса использованы уравнения теплового баланса, записанные отдельно для газовой fazы и аппарата в целом с допущением о постоянном составе раствора кислоты для малого промежутка времени. Уравнения теплового баланса были применены для случая, когда в качестве нейтрального газа используется воздух, и дополнены эмпирическими уравнениями, выражающими скорость испарения раствора кислоты, влагосодержание газовой fazы и массоотдачу воды в газовую fazу. С использованием такой модели теплопереноса и ранее полученных экспериментальных данных по температуре газовой fazы установлены зависимости теплообменного потока от состава концентрируемого раствора кислоты при разных параметрах процесса концентрирования и значения коэффициента теплоотдачи между fazами. Результаты определения коэффициента теплоотдачи представлены в виде эмпирического уравнения. Разработанная математическая модель теплопереноса была применена для расчета температуры газовой fazы и количества теплоты, подводимой к раствору кислоты в процессе концентрирования. Сопоставление расчетных зависимостей температуры газовой fazы от массовой доли воды в растворе кислоты при разных параметрах процесса концентрирования с полученными ранее экспериментальными зависимостями позволило сделать вывод о достаточной адекватности разработанной модели.

**Ключевые слова:** теплоперенос, серная кислота, концентрирование, нейтральный газ, поток теплоты, коэффициент теплоотдачи, испарение.

### **Введение**

В многих отраслях промышленности, например, в производстве взрывчатых веществ [1], образуется большое количество отработанной разбавленной серной кислоты, которую необходимо концентрировать. Для этого обычно применяют способы концентрирования, которые основаны на выпаривании воды при непосредственном контакте раствора кислоты с высокотемпературным (600–1000°C) теплоносителем – топочными газами, получаемыми сжиганием природного газа или мазута [1,2].

Перспективным может быть способ, в котором раствор кислоты нагревается через стен-

ку аппарата (внешний нагрев), например, водяным паром, а испарение происходит в дополнительно вводимый в аппарат поток воздуха, который является инертным (нейтральным) по отношению к компонентам раствора кислоты [3]. Это позволяет проводить процесс концентрирования при более низкой температуре и отказаться от использования дефицитных видов топлива. Для организации такого процесса необходимо рассчитывать его тепловые характеристики.

Целью данной работы является установление закономерностей теплопереноса и определение тепловых характеристик процесса концен-

трирования раствора серной кислоты испарением в поток нейтрального газа (воздуха) при внешнем подводе теплоты.

#### **Математическая модель теплопереноса**

Рассмотрим указанный процесс концентрирования раствора серной кислоты, проводимый в емкостном аппарате периодического действия в условиях постоянной температуры раствора. Такой процесс состоит из двух стадий: нагревания кислоты до заданной температуры и собственно концентрирования при этой температуре. Если пренебречь на первой стадии испарением раствора, то эта стадия рассчитывается с использованием известных зависимостей, описывающих нагревание жидкой среды в емкостном аппарате.

Особенностью стадии концентрирования для периодического процесса является изменение состава и объема раствора кислоты во времени. Соответственно для обеспечения постоянной температуры раствора необходимо регулировать количество подводимой к нему теплоты. При математическом описании этой стадии будем исходить из схемы тепловых потоков в элементе аппарата, представленной на рис. 1.

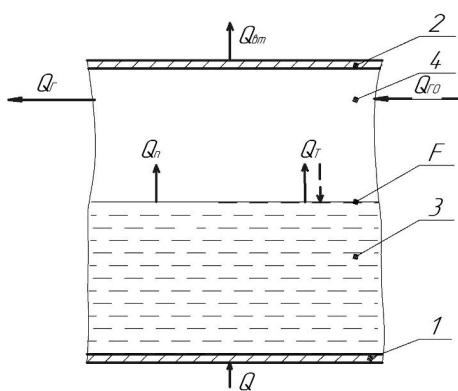


Рис. 1. Схема тепловых потоков в элементе аппарата:

1 — дно аппарата; 2 — крышка; 3 — раствор кислоты;

4 — газовая фаза

Согласно этой схеме раствор кислоты находящийся в аппарате, нагревается через дно 1 до заданной температуры и испаряется в свободное пространство, ограниченное крышкой 2. В это пространство вводится поток нейтрального газа, который захватывает пары компонентов раствора кислоты и в виде парогазовой смеси выходит из аппарата. Испарение в этом случае сопровождается межфазным теплопереносом, который включает поток теплоты, переносимой с парами компонентов раствора и тепло-

обменный поток, возникающий при контакте газовой фазы с жидкостью. Второй поток может иметь направление как от жидкой фазы в газовую (совпадать с первым), так и обратно.

Развивая физические представления о процессе концентрирования серной кислоты испарением в поток нейтрального газа, изложенные в работе [4], в дополнение к принятым в ней допущениям, будем также считать, что температура образующихся при испарении раствора кислоты паров равна его температуре. Кроме того, учитывая, что пар кислоты (моногидрат  $H_2SO_4$ ) в образующихся парах при концентрировании раствора до концентрации примерно 80% практически отсутствует, а при концентрировании до концентрации 92% его содержание не превышает 8% [2], в данных расчетах испарением кислоты пренебрегаем (испаряется только вода), ограничиваясь таким пределом концентрации. В связи с этим для упрощения расчетов состав раствора кислоты будем характеризовать массовой долей воды в растворе, изменяющейся от начального значения  $x_0$  до значения  $x$ , которое определяется временем концентрирования.

При математическом описании в данном случае будем исходить из уравнений теплового баланса, записанных отдельно для газовой фазы и аппарата в целом. Учитывая, что характеристики раствора кислоты зависят от ее состава и соответственно в данном процессе изменяются во времени, считаем, что эти уравнения применимы для малого промежутка времени, на котором, с достаточной для расчетов точностью, можно принять состав кислоты постоянным. Это позволяет записать их в конечных величинах, что упрощает математическое описание.

Исходя из вышеизложенного, указанные уравнения теплового баланса запишем в следующем виде:

— для газовой фазы

$$Q_n \pm Q_t + Q_{r0} = Q_r + Q_{\text{пот}}; \quad (1)$$

— для аппарата в целом

$$Q + Q_{r0} = Q_r + Q_{\text{дег}} + Q_{\text{пот}}; \quad (2)$$

где члены уравнений (1) и (2) выражают потоки теплоты (Дж/с):  $Q$  — подводимой к раствору теплоты;  $Q_{r0}$  — поступающей с нейтральным газом;  $Q_r$  — выводимой из аппарата с нейтральным газом (парогазовой смесью);  $Q_{\text{дег}}$  — затрачиваемой на дегидратацию кислоты;  $Q_{\text{пот}}$  — те-

ряемой в окружающую среду;  $Q_n$  — переносимой в газовую фазу с парами компонентов раствора;  $Q_t$  — передаваемой при межфазном теплообмене (знак «+» — передача от жидкости к газовой фазе; знак «-» — наоборот).

Члены этих уравнений можно выразить следующим образом:

$$Q_n = J_n w F, \quad (3)$$

где  $J_n$  — энталпия паров компонентов раствора кислоты, Дж/кг;  $w$  — скорость испарения (удельный поток паров) раствора кислоты, кг/м<sup>2</sup>·с;  $F$  — площадь поверхности испарения, м<sup>2</sup>;

$$Q_t = \alpha(t_k - t_r)F, \quad (4)$$

где  $\alpha$  — межфазный коэффициент теплоотдачи, Дж/м<sup>2</sup>·с·град;  $t_k$  — температура раствора кислоты, °C;  $t_r$  — температура газовой фазы (парогазовой смеси), °C;

$$Q_{r0} = G_r J_{r0}, \quad (5)$$

где  $G_r$  — поток (расход) абсолютно сухого нейтрального газа, кг/с;  $J_{r0}$  — энталпия нейтрального газа на входе в аппарат (в общем случае содержащего пары воды), Дж/кг;

$$Q_r = G_r J_r, \quad (6)$$

где  $J_r$  — энталпия газовой фазы, Дж/кг;

$$Q_{\text{пот}} = \alpha_{\text{пот}}(t_{ct} - t_{oc})F_{ct}, \quad (7)$$

где  $\alpha_{\text{пот}}$  — коэффициент теплоотдачи от поверхности стенки аппарата в окружающую среду, Дж/м<sup>2</sup>·с·град;  $t_{ct}$  — температура поверхности аппарата, контактирующей с окружающей средой, °C;  $t_{oc}$  — температура окружающей среды, °C;  $F_{ct}$  — площадь поверхности аппарата контактирующего с окружающей средой, м<sup>2</sup>.

Поток теплоты  $Q_{\text{дег}}$ , затрачиваемый на дегидратацию кислоты, можно определить как разность тепловых эффектов разбавления исходного и конечного растворов кислоты.

Энталпию паров раствора кислоты, образующихся при испарении, в общем случае определим как

$$J_n = (1-y)i_h + i_b, \quad (8)$$

где  $y$  — массовая доля водяного пара в парах кислоты;  $i_h$  — энталпия пара моногидрата H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>

при температуре испарения, Дж/кг;  $i_b$  — энталпия водяного пара при температуре испарения, Дж/кг.

Энталпию газовой фазы выразим как сумму энталпий абсолютно сухого нейтрального газа и водяного пара, пренебрегая присутствием в ней пары кислоты

$$J_r = c_r t_r + d_r i_b, \quad (9)$$

где  $c_r$  — удельная теплоемкость нейтрального газа, Дж/кг·град;  $d_r$  — влагосодержание газовой фазы, кг вод/кг сух. газ.

Аналогично можно выразить энталпию нейтрального газа на входе в аппарат, если он содержит определенное количество водяного пара

$$J_{r0} = c_r t_{r0} + d_{r0} i_b, \quad (10)$$

где  $t_{r0}$  — температура нейтрального газа на входе в аппарат, °C;  $d_{r0}$  — влагосодержание нейтрального газа на входе в аппарат, кг вод/кг сух. газ.

Энталпия водяного пара равна сумме его энталпии при 0°C и энталпии перегрева от 0°C до определенной температуры

$$i_b = r_0 + c_b t_b, \quad (11)$$

где  $r_0$  — энталпия водяного пара при 0°C, Дж/кг;  $c_b$  — удельная теплоемкость водяного пара, Дж/кг·град;  $t_b$  — температура водяного пара равная:  $t_{r0}$  — для пара, поступающего в аппарат с нейтральным газом;  $t_r$  для пара, содержащегося в газовой фазе;  $t_k$  для пара, поступающего в газовую фазу с поверхности раствора кислоты.

Дальнейший анализ будем проводить, принимая в качестве нейтрального газа воздух. В этом случае, в зависимостях (8–11), по аналогии с процессом сушки, значения энталпии водяного пара при 0°C, средней удельной теплоемкости водяного пара при его нагревании выше 0°C и средней удельной теплоемкости абсолютно сухого воздуха можно принять равными соответственно  $r_0 = 2493 \cdot 10^3$  Дж/кг·град;  $c_b = 1,97 \cdot 10^3$  Дж/кг·град и  $c_r = 1,0 \cdot 10^3$  Дж/кг·град. Также, исходя из вышеприведенного допущения о преимущественном испарении воды ( $y \sim 1$ ), основные тепловые потоки из уравнения теплового баланса можно описать следующим образом:

$$Q_n = (2493 \cdot 10^3 + 1,97 \cdot 10^3 t_k) w F; \quad (12)$$

$$Q_r = G_r [1 \cdot 10^3 t_k + d_r (2493 \cdot 10^3 + 1,97 \cdot 10^3 t_k)]; \quad (13)$$

$$Q_{r0} = G_r [1 \cdot 10^3 t_{r0} + d_{r0} (2493 \cdot 10^3 + 1,97 \cdot 10^3 t_{r0})]; \quad (14)$$

Подставляя зависимости (12–14) в уравнение (1), выразим из него теплообменный поток:

$$\pm Q_r = 1 \cdot 10^3 G_r (t_r - t_{r0}) + 2493 \cdot 10^3 [G_r (d_r - d_{r0}) - wF] + 1,97 \cdot 10^3 [G_r (d_r t_r - d_{r0} t_{r0}) - t_k wF] + \alpha_{\text{пот}} (t_{cr} - t_{oc}) F_{cr}. \quad (15)$$

Расчет этого потока проводится при заданных значениях величин  $t_k$ ,  $t_{r0}$ ,  $d_{r0}$ ,  $G_r$ ,  $F$ , которые являются параметрами процесса концентрирования. Другие величины, входящие в уравнение (15) определим следующим образом.

Скорость испарения раствора кислоты можно рассчитать, используя уравнение:

$$w = w_0 e^{k_w x}, \quad (16)$$

где  $w_0$  и  $k_w$  – экспериментальные коэффициенты, значения которых для конкретных режимов процесса концентрирования приведены в работе [5].

Влагосодержание газовой фазы  $d_r$  определим через составляющую этого влагосодержания, образующуюся при испарении воды из раствора кислоты ( $d_r - d_{r0}$ ), решая квадратичное уравнение, полученное в работе [6]:

$$(d_r - d_{r0})^2 + \rho(d_r - d_{r0}) - q = 0, \quad (17)$$

$$\text{где } \rho = \frac{\mu_v}{\mu_r} + \frac{\beta F}{G_r} (P - P_{bh}); \quad q = \beta F P_{bh} \mu_v; \quad \mu_v \text{ и } \mu_r \text{ – мас-}$$

са одного киломоля соответственно воды и нейтрального газа, кг/кмоль;  $\beta$  – коэффициент массоотдачи по воде, кг/м<sup>2</sup>·с·Па;  $P$  – общее давление в газовой фазе, Па;  $P_{bh}$  – давление насыщенного водяного пара при температуре газовой фазы, Па.

За величину этой составляющей принимаем действительный положительный корень уравнения (17).

Необходимое значение коэффициента массоотдачи  $\beta$  для решения этого уравнения (17) можно рассчитать, используя уравнение:

$$Nud = Nud_0 e^{k_\beta x}, \quad (18)$$

соответственно выразив коэффициент массоотдачи как

$$\beta = \frac{Nud \cdot D}{\delta} \cdot \frac{\mu_v}{RT_r}, \quad (19)$$

где  $\delta$  – диаметр аппарата, м;  $D$  – коэффициент молекулярной диффузии пара воды в воздухе, м<sup>2</sup>/с;  $R$  – газовая постоянная, Дж/кмоль·град;  $T_r$  – абсолютная температура газовой фазы, К;  $Nud_0$  и  $k_\beta$  – экспериментальные коэффициенты, значения которых для конкретных режимов процесса концентрирования определяются по данным работы [4].

Коэффициент  $\alpha_{\text{пот}}$ , входящий в уравнение (15), можно определить по известным эмпирическим уравнениям, принимая приближенно температуру поверхности стенки аппарата равной  $t_{cr} = (t_r - t_{oc})/2$ .

#### **Результаты исследования закономерностей теплопереноса**

Уравнение (15) позволяет определить теплообменный поток, если наряду с указанными величинами известно также значение температуры газовой фазы. В данных расчетах использовали значения этой температуры, измеренные непосредственно в опытах, проводившихся при экспериментальных исследованиях массопереноса, описанных в работе [4]. При этом за температуру газовой фазы принимали температуру паровоздушной смеси на выходе из колбы, в которой концентрировали раствор кислоты.

Согласно экспериментальным данным, полученным в работе [4], температура газовой фазы определяется режимными параметрами процесса концентрирования и зависит от состава концентрируемого раствора кислоты, а соответственно для периодического процесса изменяется во времени. Зависимости температуры газовой фазы от времени показывают ([4], рис. 2), что эта температура при концентрировании раствора кислоты сначала растет по мере его нагревания, затем падает при переходе температуры раствора к постоянному значению, после достижения этого значения начинает плавно уменьшаться, приближаясь к линейной зависимости.

В данном случае расчет теплообменного потока проводили после выхода температуры газовой фазы на линейную зависимость. Процесс концентрирования также ограничивался продолжительностью опыта, которая, как правило, составляла 6 ч. Поэтому зависимости теплообменного потока от состава кислоты, рассчитанные по уравнению (15) с использованием экспериментальных значений температуры газовой фазы, полученных в работе [4], представленные на рис. 2, располагаются в разных диапазонах изменения массовой доли воды в растворе кислоты (кривые смещены друг отно-

сительно друга).

Как следует из рис. 2, теплообменный поток во всех приведенных случаях уменьшается с уменьшением массовой доли воды в растворе кислоты (повышением концентрации кислоты). С увеличением скорости воздуха над раствором (рис. 2, а), температуры нагрева раствора (рис. 2, в), начальной массовой доли воды в растворе кислоты (рис. 2, г) он растет, а с увеличением начальной температуры воздуха (рис. 2, б) уменьшается. Причем, когда начальная температура воздуха достигает 100°C, теплообменный поток начинает менять знак, что свидетельствует об изменении направления теплоотдачи. При более высокой температуре воздуха в рассматриваемых пределах изменения состава раствора кислоты теплота передается уже от газовой фазы

к раствору (рис. 2, б).

Сопоставление теплообменного потока с потоком теплоты, передаваемой в газовую fazу с парами компонентов раствора кислоты, показывает, что при теплоотдаче от раствора в газовую fazу первый поток  $Q_t$  в большинстве случаев превышает второй  $Q_n$ . Соизмеримыми они становятся при небольших значениях температуры раствора, а также при начальной температуре воздуха близкой к 100°C (изменении направления теплообменного потока). Отношение потоков теплоты  $Q_t/Q_n$  возрастает с уменьшением массовой доли воды в растворе кислоты, скорости воздуха, его температуры, а также увеличением температуры раствора и начальной концентрации кислоты в растворе.

В результате подстановки выражения (4) в

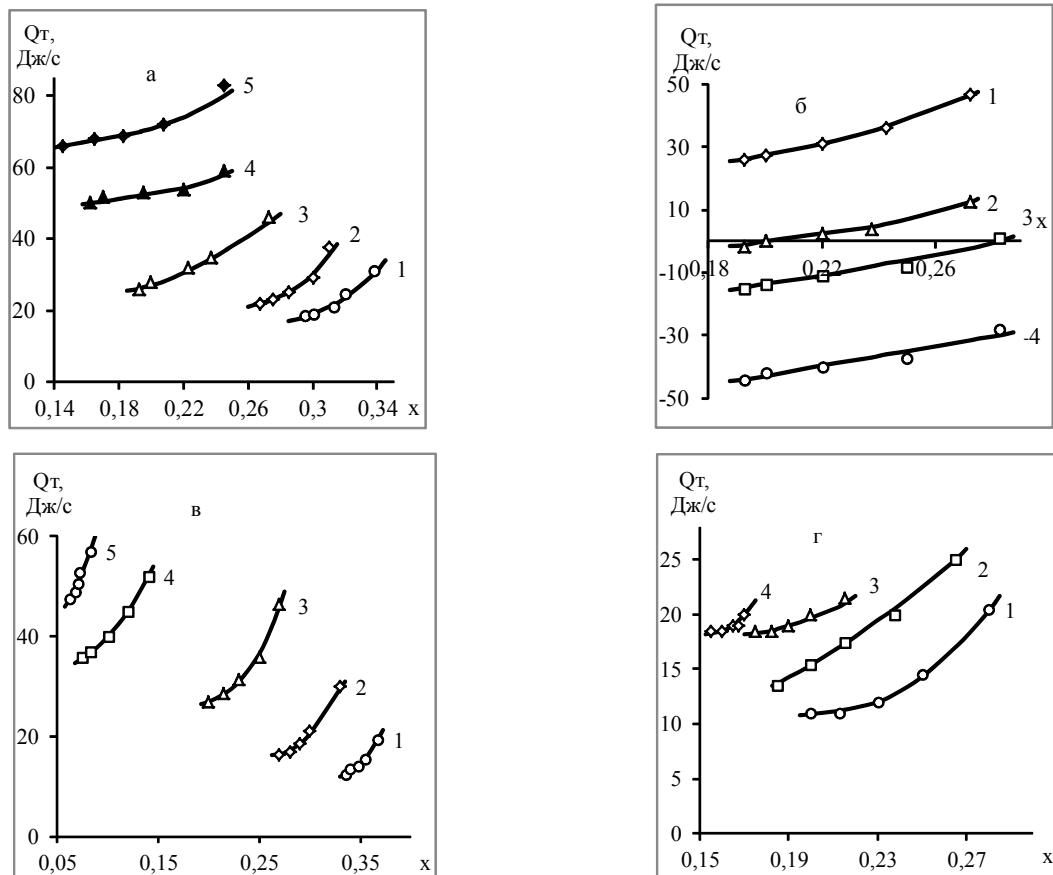


Рис. 2. Зависимости теплообменного потока от состава раствора кислоты при разных параметрах процесса: а — скорости воздуха ( $t_k=142^{\circ}\text{C}$ ;  $t_{r0}=20^{\circ}\text{C}$ ;  $x_0=0,4$ ): 1 —  $9=1,06 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ ; 2 —  $9=2,12 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ ; 3 —  $9=3,93 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ ; 4 —  $9=8,06 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ ; 5 —  $9=10,6 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ ;

б — начальной температуры воздуха ( $t_k=142^{\circ}\text{C}$ ;  $9=3,93 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ ;  $x_0=0,4$ ): 1 —  $t_{r0}=20^{\circ}\text{C}$ ;

2 —  $t_{r0}=100^{\circ}\text{C}$ ; 3 —  $t_{r0}=142^{\circ}\text{C}$ ; 4 —  $t_{r0}=200^{\circ}\text{C}$ ,

в — температуры раствора кислоты ( $9=3,93 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ ;  $t_{r0}=20^{\circ}\text{C}$ ;  $x_0=0,4$ ): 1 —  $t_k=100^{\circ}\text{C}$ ;

2 —  $t_k=120^{\circ}\text{C}$ ; 3 —  $t_k=142^{\circ}\text{C}$ ; 4 —  $t_k=180^{\circ}\text{C}$ ; 5 —  $t_k=200^{\circ}\text{C}$ ,

г — начальной массовой доли воды в кислоте ( $t_k=142^{\circ}\text{C}$ ;  $9=3,93 \cdot 10^3 \text{ м/с}$ ;  $t_{r0}=20^{\circ}\text{C}$ ):

1 —  $x_0=0,4$ ; 2 —  $x_0=0,35$ ; 3 —  $x_0=0,25$ ; 4 —  $x_0=0,2$

уравнение (15) и использования экспериментальных значений температуры газовой фазы полученных в работе [4] были определены значения коэффициента межфазной теплоотдачи и установлена его зависимость от состава раствора кислоты и параметров процесса концентрирования. На рис. 3 показаны зависимости этого коэффициента от массовой доли воды в растворе кислоты при разных скоростях воздуха, которые в полулогарифмических координатах имеют линейный характер.

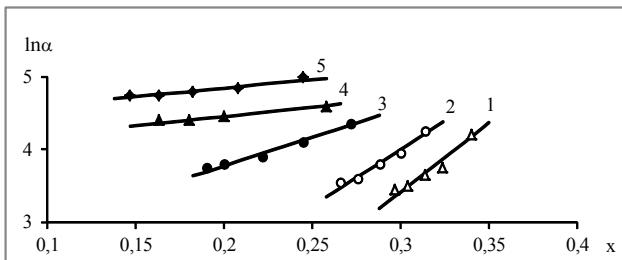


Рис. 3. Зависимость коэффициента теплоотдачи от состава кислоты при разных скоростях воздуха  
( $t_k=142^{\circ}\text{C}$ ;  $t_{r0}=20^{\circ}\text{C}$ ;  $x_0=0,4$ ): 1 –  $9=1,06 \cdot 10^3$  м/с;  
2 –  $9=2,12 \cdot 10^3$  м/с; 3 –  $9=3,93 \cdot 10^3$  м/с; 4 –  $9=8,06 \cdot 10^3$  м/с;  
5 –  $9=10,6 \cdot 10^3$  м/с

Аналогичный характер эти зависимости имеют и при изменении других параметров процесса концентрирования (температуры раствора кислоты, начальной температуры воздуха, начальной концентрации кислоты в растворе). Линейный характер зависимости логарифма коэффициента теплоотдачи от массовой доли воды в растворе кислоты позволил аппроксимировать ее показательной функцией, которая при переходе к числу Нуссельта имеет вид:

$$Nu = Nu_0 e^{k_a x}, \quad (20)$$

где  $Nu = \frac{\alpha \delta}{\lambda}$  – число Нуссельта;  $Nu_0$  и  $k_a$  – экспериментальные коэффициенты;  $\lambda$  – коэффициент теплопроводности газовой фазы, Дж/м·с·град.

Обработка экспериментальных данных по теплообмену между поверхностью раствора кислоты и газовой фазой позволила получить эмпирические уравнения для расчета этих коэффициентов:

$$Nu_0 = 17,3 \cdot 10^{-9} Re^{2,79} \left( \frac{t_k}{t_{oc}} \right)^{7,24} x_0^{-1,49}; \quad (21)$$

$$k_a = 11,3 Re^{-0,95} \left( \frac{t_k}{t_{oc}} \right)^{-1,46} x_0^{1,13}, \quad (22)$$

которые применимы в пределах изменения безразмерных параметров:

$$6,93 \leq Re \leq 69,3; 5,8 \leq \left( \frac{t_k}{t_{oc}} \right) \leq 10,0; 0,2 \leq x_0 \leq 0,4.$$

#### *Определение тепловых характеристик процесса концентрирования*

Предложенная математическая модель теплопереноса при концентрировании раствора серной кислоты и полученные с использованием экспериментальных данных эмпирические уравнения позволяют рассчитать количество теплоты, которое необходимо подводить к раствору для обеспечения заданных условий концентрирования. При постоянной температуре раствора этот тепловой поток зависит от состава раствора и в периодическом процессе концентрирования соответственно изменяется во времени. Его величину можно определить из уравнения (2), с учетом зависимостей (7), (13), (14), выражаящих другие потоки теплоты.

Необходимую для такого расчета температуру газовой фазы определим из уравнения (15), подставляя выражение (4) и рассчитывая коэффициент теплоотдачи  $\alpha$  по уравнению (20).

Расчет тепловых характеристик процесса концентрирования проводим при заданных параметрах процесса, окружающей среды и характеристик аппарата:  $t_k$ ,  $t_{r0}$ ,  $d_{r0}$ ,  $\vartheta$ ,  $x_0$ ,  $G_r$ ,  $t_{oc}$ ,  $\varphi$ ,  $B$ ,  $F$ ,  $F_c$ ,  $\delta$  в нижеописанной последовательности, где  $\varphi$  – относительная влажность окружающего воздуха;  $B$  – атмосферное давление.

Для конкретных значений указанных параметров определяем значения коэффициентов  $w_0$ ,  $k_w$ ,  $Nu_d$ ,  $k_\beta$ ,  $Nu_0$ ,  $k_a$  в уравнениях (16), (18), (20).

Затем задавая значения массовой доли воды в растворе кислоты через достаточно малые интервалы (исходя из принятого допущения о постоянном составе кислоты на коротком промежутке времени) в диапазоне ее изменения от начального значения  $x_0$  до конечного (заданного) значения  $x_n$ , для каждого заданного  $x_i$  ( $i$  – номер интервала) проводим следующие расчеты:

– рассчитываем скорость испарения раствора  $w_i$ , а также, принимая в первом приближе-

ния за температуру газовой фазы значение

$$t_r = \frac{t_k + t_{r0}}{2},$$
 коэффициент массоотдачи воды  $\beta_i$ ,

влагосодержание газовой фазы  $d_{ri}$ , коэффициента теплоотдачи  $\alpha_i$  (приняв коэффициент теплопроводности  $\lambda$  по воздуху), используя для этого уравнения (16), (17), (18), (20);

— полученные значения этих величин подставляем в уравнение (15) и с учетом выражения (4) определяем уточненную температуру газовой фазы (второе приближение) для каждого значения  $x_i$ , а также представляем ее в виде зависимости  $t_r=f(x)$ ;

— используя уточненные значения температуры газовой фазы из уравнения (2) с учетом зависимостей (7), (13), (14), определяем тепловой поток, подводимый к раствору кислоты, и представляем его в виде зависимости  $Q=f(x)$ .

Расчетные зависимости температуры газовой фазы от массовой доли воды в растворе кислоты при разных параметрах процесса концентрирования приведены на рис. 4 в сопоставлении с экспериментальными данными, полученными в работе [4].

Анализ этих зависимостей показывает, что с повышением концентрации кислоты в растворе температура газовой фазы уменьшается. С уве-

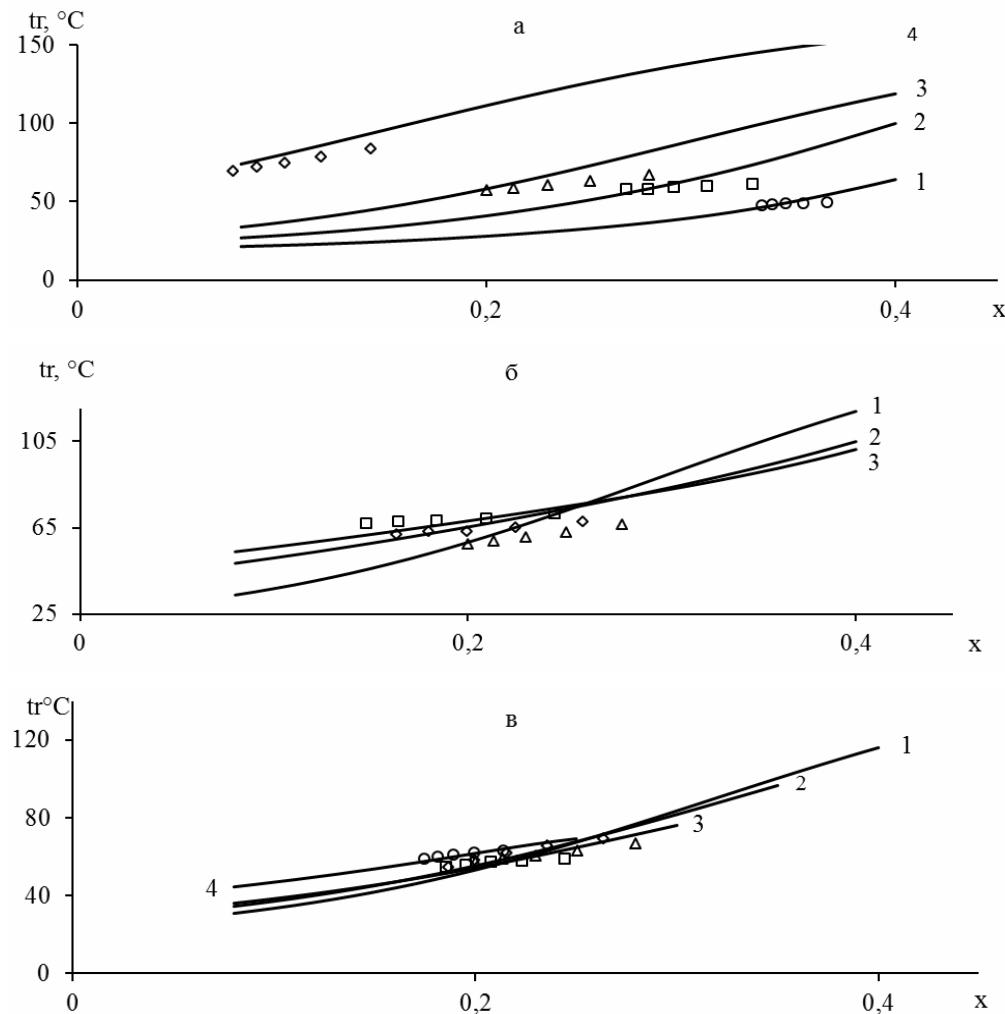


Рис. 4. Зависимости температуры газовой фазы от состава раствора кислоты при разных параметрах процесса:

а — температуры раствора кислоты ( $q=3,93 \cdot 10^3$  м/с;  $t_{r0}=20^\circ\text{C}$ ;  $x_0=0,4$ ):

1 —  $t_k=100^\circ\text{C}$ ; 2 —  $t_k=120^\circ\text{C}$ ; 3 —  $t_k=142^\circ\text{C}$ ; 4 —  $t_k=180^\circ\text{C}$ ,

б — скорости воздуха ( $t_k=142^\circ\text{C}$ ;  $t_{r0}=20^\circ\text{C}$ ;  $x_0=0,4$ ):

1 —  $q=3,93 \cdot 10^3$  м/с; 2 —  $q=8,06 \cdot 10^3$  м/с; 3 —  $q=10,6 \cdot 10^3$  м/с,

в — начальной массовой доли воды в кислоте ( $t_k=142^\circ\text{C}$ ;  $q=3,93 \cdot 10^3$  м/с;  $t_{r0}=20^\circ\text{C}$ ):

1 —  $x_0=0,4$ ; 2 —  $x_0=0,35$ ; 3 —  $x_0=0,25$ ; 4 —  $x_0=0,2$

личением температуры раствора кислоты (рис. 4,а) она растет. Влияние таких параметров, как скорость воздуха и начальная массовая доля воды в растворе, на температуру газовой фазы имеет сложный характер. При низкой концентрации кислоты в растворе с увеличением скорости воздуха (рис. 4,б) и начальной массовой доли воды в растворе (рис. 4,в) температура газовой фазы растет, при превышении массовой доли воды в растворе значения  $x=0,2$  в результате пересечения кривых наблюдается обратная зависимость.

Из сопоставления расчетных и экспериментальных зависимостей температуры газовой фазы

от массовой доли воды в растворе кислоты можно сделать вывод о достаточной адекватности модели теплопереноса.

Результаты расчета потока теплоты, подводимой к раствору кислоты, представлены на рис. 5 в виде графиков зависимостей этого потока от массовой доли воды в растворе.

Из представленных данных следует, что поток теплоты, подводимой к раствору кислоты, уменьшается с уменьшением массовой доли воды в растворе (повышением концентрации кислоты). Он уменьшается также с понижением температуры раствора (рис. 5,а), скорости

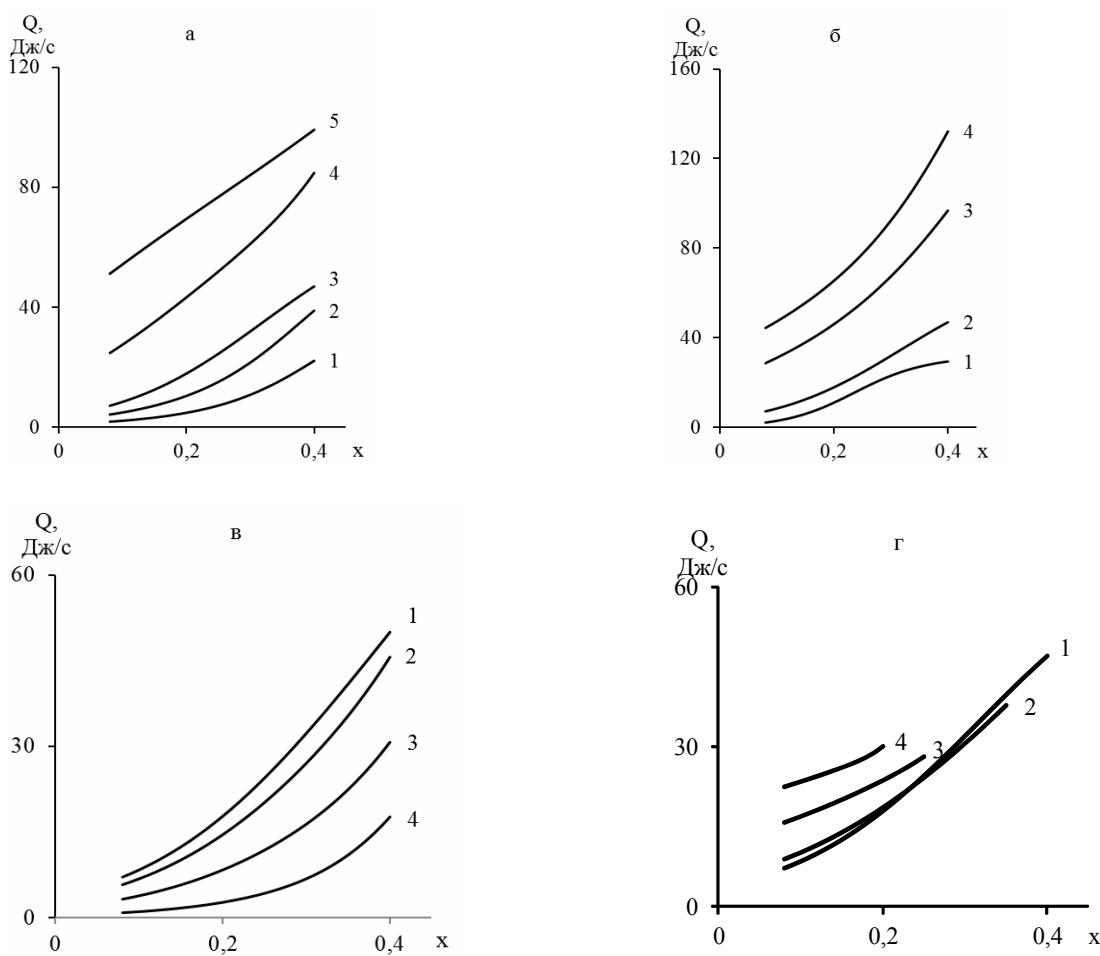


Рис. 5. Зависимости подводимого к раствору кислоты потока теплоты от состава раствора при разных параметрах процесса концентрирования:

а – температуры раствора кислоты ( $\vartheta=3,93 \cdot 10^3$  м/с;  $t_{r0}=20^\circ\text{C}$ ;  $x_0=0,4$ ):

1 –  $t_k=100^\circ\text{C}$ ; 2 –  $t_k=120^\circ\text{C}$ ; 3 –  $t_k=142^\circ\text{C}$ ; 4 –  $t_k=180^\circ\text{C}$ ; 5 –  $t_k=200^\circ\text{C}$ ,

б – скорости воздуха ( $t_k=142^\circ\text{C}$ ;  $t_{r0}=20^\circ\text{C}$ ;  $x_0=0,4$ ):

1 –  $9=2,12 \cdot 10^3$  м/с; 2 –  $9=3,93 \cdot 10^3$  м/с; 3 –  $9=8,06 \cdot 10^3$  м/с; 4 –  $9=10,6 \cdot 10^3$  м/с,

в – начальной температуры воздуха ( $t_k=142^\circ\text{C}$ ;  $\vartheta=3,93 \cdot 10^3$  м/с;  $x_0=0,4$ ):

1 –  $t_{r0}=20^\circ\text{C}$ ; 2 –  $t_{r0}=50^\circ\text{C}$ ; 3 –  $t_{r0}=100^\circ\text{C}$ ; 4 –  $t_{r0}=142^\circ\text{C}$ ,

г – начальной массовой доли воды в кислоте ( $t_k=142^\circ\text{C}$ ;  $\vartheta=3,93 \cdot 10^3$  м/с;  $t_{r0}=20^\circ\text{C}$ ):

1 –  $x_0=0,4$ ; 2 –  $x_0=0,35$ ; 3 –  $x_0=0,25$ ; 4 –  $x_0=0,2$

воздуха (рис. 5,б), увеличением температуры воздуха (рис. 5,в) и начальной массовой доли воды в растворе (рис. 5,г).

#### **Выводы**

1. Разработана математическая модель теплопереноса при концентрировании раствора серной кислоты испарением в поток нейтрального газа, которая учитывает наряду с потоком теплоты, передаваемой в газовую фазу с парами компонентов раствора, теплообменный поток между жидкой и газовой фазами.

2. В большинстве случаев теплообменный поток превышает поток теплоты, передаваемой с парами компонентов раствора. При подаче воздуха с температурой 100°C и более происходит изменение направления теплоотдачи: теплота начинает передаваться от газовой фазы к раствору кислоты.

3. На основании проведенных исследований получены эмпирические уравнения, позволяющие определить коэффициенты теплоотдачи между жидкой и газовой фазами. Эти уравнения совместно с математической моделью теплопереноса позволяют рассчитывать температуру газовой фазы (парогазовой смеси) и количество теплоты, которое необходимо подводить к раствору кислоты при его концентрировании. В результате таких расчетов установлены зависимости этих величин от массовой доли воды в растворе при разных параметрах процесса концентрирования.

#### **СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Гиндич В.И., Забелин Л.В., Марченко Г.Н. Производство нитратов целлюлозы. Регенерация отработанных и рекуперированных нитрационных кислотных смесей. – М: НПО «Информация и технико-экономические исследования», 1991. – 126 с.

2. Лебедев А.Я. Установки для денитрации и концентрирования серной кислоты. – М: Химия, 1972. – 240 с.

3. Пат. 97392 Україна, МПК С01Б17/88 Б01710-00 Спосіб концентрування сірчаної кислоти / Лукашов В.К., Романько С.М., Тимофієв С.В., Гудзівський А.М. – Заявл. 13.10.2014 р. – Опубл. 10.03.2015. – Бюл. № 5.

4. Лукашов В.К., Романько С.Н., Тимофієв С.В. Массообмен при концентрировании серной кислоты испарением в поток воздуха // Журнал інженерних наук. – 2016. – № 2. – С.В1–В7.

5. Rate of components evaporation from sulfuric acid solution during its concentrating in the air flow / Lukashov V., Romanko S., Timofeev S., Protsenko A. // Chemistry and Chemical Technology. – 2017. – Vol. 11. – No. 3. – P.344-348.

6. Лукашов В.К., Романько С.М., Тимофієв С.В. Моделювання процесу концентрування розчину сульфатної кислоти випаровуванням у потік нейтрального газу // Питання хімії та хімічної технології. – 2017. – № 5. – С.42-49.

Поступила в редакцию 19.03.2018

#### **ТЕПЛОПЕРЕНЕСЕННЯ ПРИ КОНЦЕНТРУВАННІ РОЗЧИНУ СІРЧАНОЇ КИСЛОТИ ВИПАРОВУВАННЯМ У ПОТІК НЕЙТРАЛЬНОГО ГАЗУ**

**В.К. Лукашов, С.М. Романько, В.І. Середа,  
Є.В. Костюченко**

На підставі наближених фізичних уявлень про теплоперенесення при концентруванні розчину сірчаної кислоти випаровуванням у потік інертного (нейтрального) газу із зовнішнім нагріванням розчину розроблена математична модель, яка враховує, разом з потоком теплоти, переданої в газову фазу з парами компонентів розчину, потік теплоти, що виникає внаслідок теплообміну між розчином кислоти і газовою фазою. При математичному описі теплоперенесення використані рівняння теплового балансу, що записані окремо для газової фази і апарату в цілому з допущенням про постійний склад розчину кислоти для малого проміжку часу. Рівняння теплового балансу були застосовані для випадку, коли в якості нейтрального газу використовується повітря, і доповнені емпіричними рівняннями, що виражають швидкість випаровування розчину кислоти, вміст вологи газової фази і масовіддачі води в газову фазу. З використанням такої моделі теплоперенесення і раніше отриманих експериментальних даних за температурою газової фази встановлені залежності теплообмінного потоку від складу розчину кислоти, що концентрується при різних параметрах процесу і значення коефіцієнта тепловіддачі між фазами. Результати визначення коефіцієнта тепловіддачі надані у вигляді емпіричного рівняння. Розроблена математична модель теплоперенесення була застосована для розрахунку температури газової фази і кількості теплоти, що підводиться до розчину кислоти в процесі концентрування. Зіставлення розрахункових залежностей температури газової фази від масової частки води в розчині кислоти при різних параметрах процесу концентрування з отриманими раніше експериментальними залежностями дозволило зробити висновок про достатність адекватності розробленої моделі.

**Ключові слова:** теплоперенесення, сірчана кислота, концентрування, нейтральний газ, потік теплоти, коефіцієнт тепловіддачі, випаровування.

## THERMAL TRANSFER IN THE PROCESS OF CONCENTRATION OF SULFURIC ACID BY EVAPORATION INTO A FLOW OF NEUTRAL GAS

*V.K. Lukashev<sup>a</sup>, S.M. Romanko<sup>a</sup>, V.I. Sereda<sup>a</sup>,  
E.V. Kostyuchenko<sup>b</sup>*

<sup>a</sup> Shostka Institute of Sumy State University, Shostka, Ukraine

<sup>b</sup> Sumy State University, Sumy, Ukraine

*On the basis of the approximate physical concepts of the heat transfer in the process of the concentration of sulfuric acid solution by evaporation into a stream of an inert (neutral) gas with external heating of the solution, a mathematical model is developed which takes into account the heat flow arising as a result of heat exchange between the acid solution and the gas phase, along with the flow of heat transferred to the gas phase with the vapor of the solution components. For the mathematical description of the heat transfer, the heat balance equations, written separately for the gas phase and the apparatus as a whole, were used on the assumption of a constant composition of the acid solution for a short period of time. The heat balance equations were applied in the case when air is used as a neutral gas and they were supplemented by empirical equations for the rate of evaporation of the acid solution, the moisture content of the gas phase, and the mass transfer of water to the gas phase. Using the model of heat transfer and previously obtained experimental data on the temperature of the gas phase, the heat exchange flow was determined as a function of the composition of the acid solution being concentrated at different parameters of the concentration process and the heat transfer coefficient between the phases. The results of the determination of the heat transfer coefficient were presented in the form of an empirical equation. The developed mathematical model of heat transfer was used to calculate the temperature of the gas phase and the amount of heat supplied to the acid solution during the concentration process. The comparison of the calculated dependences of the temperature of the gas phase on the mass fraction of water in the acid solution at different parameters of the concentration process with the experimental dependences obtained earlier allowed drawing the conclusion that the developed heat transfer model is applicable.*

**Keywords:** heat transfer; sulfuric acid; concentration; neutral gas; heat flux; heat transfer coefficient; evaporation.

## REFERENCES

1. Gindich V.I., Zabelin L.V., Marchenko G.N., *Proizvodstvo nitratorov tselyulozy. Regeneratsiya otrobotannykh i rekuperirovannykh nitratsionnykh kislotnykh smesey* [Production of cellulose nitrates. Regeneration of waste and recovered nitrate acid mixtures.]. NPO «Informatsiya i Tekhniko-Ekonomicheskiye Issledovaniya» Publishers, Moscow, 1991. 126 p. (in Russian).
2. Lebedev A.M., *Ustanovki dl'ya denitratsii i kontsentrirovaniya sernoi kisloty* [Equipment for the denitrification and concentration of sulfuric acid]. Khimiya, Moscow, 1972. 240 p. (in Russian).
3. Lukashov V.K., Roman'ko S.M., Timofeev S.V., Gudzovskiy A.M., *Sposob kontsentruvannya sirchanoyi kysloty* [A method of concentrating sulfuric acid]. Patent UA, no. 97392, 2015. (in Ukrainian).
4. Lukashov V.K., Roman'ko S.N., Timofeev S.V. Massoobmen pri kontsentrirovani sernoi kisloty ispareniem v potok vozdukh [Mass transfer at concentrating sulfuric acid with evaporation into the air flow]. *Zhurnal Inzhenernykh Nauk*, 2016, no. 2, pp. B1-B7. (in Russian).
5. Lukashov V., Romanko S., Timofeev S., Protsenko A. Rate of components evaporation from sulfuric acid solution during its concentrating in the air flow. *Chemistry & Chemical Technology*, 2017, vol. 11, no. 3, pp. 344-348.
6. Lukashov V.K., Romanko S.M., Timofeev S.V. Modeluvannya protsesu kontsentruvannya rozchinu sul'fatnoyi kysloty viparovuvanniam u potik neitral'nogo gazu [Simulation of the process of concentrating sulfuric acid solution by evaporation into a flow of neutral gas]. *Voprosy Khimii i Khimicheskoi Tekhnologii*, 2017, no. 5, pp. 42-49. (in Ukrainian).