

前驱体液滴在射频感应等离子体中的蒸发和传热传质

宋卓林, 单彦广, 许恋斯

(上海理工大学 能源与动力工程学院, 上海 200093)

摘要: 建立液滴在 RF(高频感应) 等离子体射流中的运动蒸发模型, 模拟前驱体液滴的蒸发、传热和传质。通过时变系统控制方法的质量守恒方程、动量守恒方程和能量守恒方程来预测射频电感耦合等离子体内液滴的运动和蒸发, 得到了液滴半径和液滴表面温度的变化以及液滴内部温度分布。研究表明: 随着液滴初始尺寸的增大, 在热等离子体低温区的停留时间越长, 液滴表面缓慢而均匀的受热, 因此表面溶质浓度到达饱和浓度的时间较长, 半径变化率变小。液滴初始入射速度越大, 所经历的环境温度越高, 液滴表面蒸发速度越快, 半径变化越小, 溶质结晶析出所需时间越短。

关键词: RF 等离子体; 蒸发模型; 传热传质

中图分类号: TK123 文献标识码: A
DOI: 10.16146/j.cnki.rndlge.2016.01.006

引言

传统的等离子体喷涂技术已经被用来制造耐磨损、耐碰撞、耐高温的陶瓷和金属涂料^[1-2]。而 SPPS(液体前驱体等离子体喷涂技术) 则是一种用来制备纳米结构陶瓷材料的新兴技术。SPPS 技术对传统的等离子体喷涂技术进行了改进^[3], 它具有化学组分可控性及材料选用的灵活性等优势^[4], 能从一定程度上免除了传统喷涂技术中纳米颗粒繁琐的制备过程^[3, 5-6]。

溶液液滴注入高频感应热等离子体所形成的涂层时质量受到很多因素的影响, 例如前驱体溶液液滴的初始注入参数、液滴内部的传热传质过程、液滴表面结晶的物理化学过程等^[7]。液滴溶质受热析出后形成的颗粒破裂的形态对于涂层结构有着重要的影响, 然而在制备涂层的过程中, 很难以实验的方式监测到在毫秒级时间下液滴的成壳情况。因此本研究建立相应的数学模型以数值模拟的方式来分析液滴与热等离子体射流场传热传质的过程, 对于继续发展溶液注入热等离子体喷涂技术有着重要的理

论和实际意义。

本研究模拟了液滴在高频感应热等离子体内的运动蒸发及传热传质过程, 综合考虑了液滴、热等离子体气流随着温度和组份变化时液滴表面气态混合物、斯蒂芬流对薄膜理论的修正影响以及液滴内部的环流作用, 进一步获得了液滴的表面温度、尺寸变化以及溶液液滴内温度、溶质浓度的分布情况及变化过程。

1 数学模型

本研究采用基于单彦广等人建立的二维非稳态模型^[2, 8], 等离子体温度场和速度场作为已知条件, 如图 1 所示。其中, X 代表高频感应等离子体炬长度方向, Y 为径向。高频感应等离子体内有三股工作氩气, 分别为内气(载气)、中气(等离子体气体)和边气(保护气体)。

进气量分别为 2 L/min, 4 L/min, 29 L/min。等离子体工作气体的初始环境温度为 300 K, 激励电流频率为 3 MHz, 输入功率为 5 kW。材料的前驱体溶液液滴由内气携带, 经由雾化喷口进入热等离子体射流场中, 在进入热等离子体后, 液滴内溶剂受热蒸发, 使得溶质浓度增加, 在到达饱和浓度后, 溶质结晶析出。

由于是考察单个液滴在高频感应热等离子体内运动和蒸发过程, 从而得到液滴半径、表面温度的变化情况, 考察液滴初始入射参数对其运动蒸发过程的影响。因此, 数值计算至液滴表面浓度到达溶液的临界饱和浓度即停止。为简化计算模型, 对其进行以下假设: (1) 液滴球形对称蒸发, 温度均匀; (2) 根据气相薄膜理论, 液滴表面气相混合层应用准稳态分析; (3) 不考虑多个液滴相互碰撞、影响及二次雾化作用; (4) 只考虑热等离子体对液滴的影

收稿日期: 2015-04-15; 修订日期: 2015-10-26

基金项目: 上海市教委科研创新基金重点项目(项目编号: 13ZZ119)

作者简介: 宋卓林(1988-), 女, 河南商丘人, 上海理工大学硕士研究生。

响,不考虑液滴反对象热等离子体的作用;(5)忽略液滴在流场中的热泳力和重力作用以及热等离子体的稀薄气体效应,只考虑气体阻力作用。

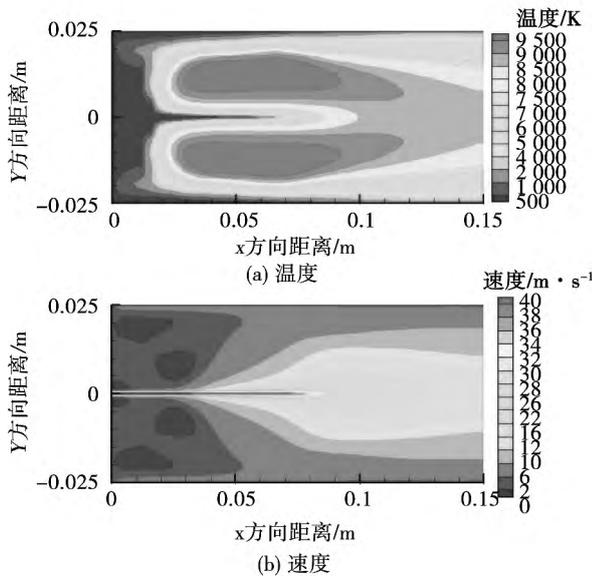


图 1 RF 热等离子体温度和速度的分布

Fig. 1 Temperature & velocity distribution of RF thermal plasma

液滴随着内气沿轴向进入高频感应热等离子体射流中,受到环境温度的加热,溶剂蒸发,溶质结晶析出的过程较为复杂。因此建立液滴的运动蒸发模型^[11],由动量、质量控制方程确定液滴在高频感应热等离子体中的液滴半径、表面温度的变化情况^[12]。由于液滴在高频感应热等离子体射流场中沿轴线方向深入运动,液滴与环境气流就存在着相对速度,液滴内部就会产生环流,这对液滴的热量质量传递有着重要的影响。因此液滴内部环流运动速度为希尔球形涡分布^[13]。

2 计算结果和分析

本研究模拟了醋酸锆($ZrO(C_2H_3COO)_2$)溶液液滴在高频感应热等离子体内的运动蒸发过程。液滴沿着对称轴方向进入热等离子体中受热,液滴中的溶剂蒸发,液滴内的溶质质量分数浓度逐渐升高,在到达临界过饱和浓度时,醋酸锆就会发生化学分解形成氧化锆(ZrO_2),并且结晶析出。计算中使用醋酸锆的各种物理性质的经验公式见参考文献[14]和文献[15]。

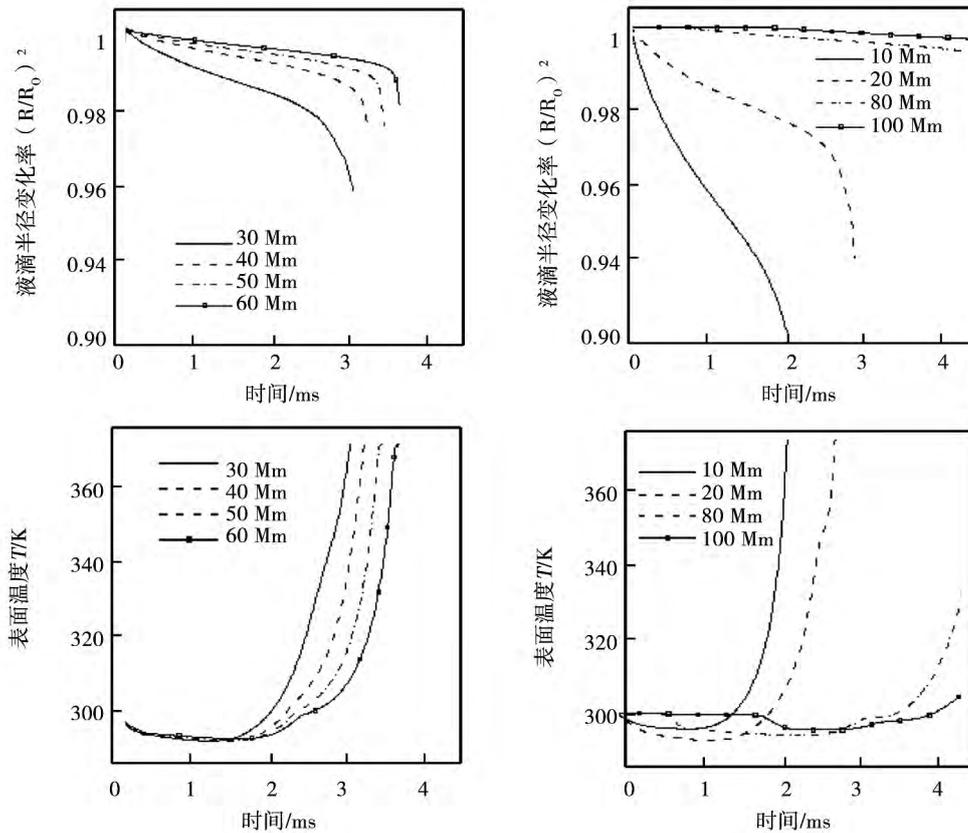
2.1 初始入射尺寸对液滴蒸发过程的影响

针对液滴初始入射尺寸的影响,首先分别选取半径为 10、20、30、40、50、60、80 和 100 μm 这几种尺寸的液滴在 10 m/s 的轴向入射速度情况下,在高频感应热等离子体中的运动蒸发,比较了液滴的表面温度、半径变化。液滴的初始温度为 300 K。

由于所选取的液滴尺寸的范围跨度较大,故计算所得的变量数值变化也较大,为了便于分析观察,将较大较小尺寸的液滴和中等尺寸的液滴的计算结果图形分别在两个图中进行研究比较。图 2(a)和图 2(b)分别表示中等尺寸和较大较小尺寸液滴的半径变化曲线。中等尺寸的液滴随着尺寸的增加,半径的变化越不明显,但液滴所需的蒸发时间却呈现增加趋势。半径为 10 和 20 μm 液滴表面溶质到达饱和浓度所需时间最短,而半径变化却最大。这是由于较小尺寸的液滴能迅速吸收环境热量,充分受热蒸发,到计算停止时,其半径变化最大。而半径为 80 和 100 μm 的液滴,由于初始轴向动量不大,使得液滴初期在热等离子体的低温区停留时间较长,因此液滴表面溶质浓度到达析出的所需时间较长,半径的变化较小。不同尺寸对液滴蒸发过程的影响也体现在液滴表面温度的变化上。图 2(c)及图 2(d)所示为不同初始入射尺寸液滴表面温度的变化曲线。对于半径为 10 和 20 μm 的液滴,虽然在进入热等离子体内的初始阶段,所经历的环境温度并不高,而溶剂的蒸发却带走了部分液滴表面的温度,使得液滴表面温度降低。随着液滴逐步向等离子体内部高温区深入,液滴受热,表面温度就呈现上升的趋势。而对于半径为 80 和 100 μm 这类较大尺寸的液滴,由于初始轴向动量较小,液滴在热等离子体低温区停滞时间较长,经历的环境温度使得液滴表面溶剂蒸发的时间增加,因此表面温度低于 300 K 的时间比较长。

2.2 初始入射速度对液滴蒸发过程的影响

对在高频感应热等离子体中运动蒸发液滴的影响因素较多,液滴的初始入射速度就是其中之一,本节模拟了在不同初始入射速度 R_0 下,40 μm 液滴的运动蒸发情况。所选取考察的液滴初始入射速度分别为 5、10、15、20、25、30 和 40 m/s,分别代表了不同程度的入射速度。液滴初始温度为 300 K。为了更好地分析比较不同入射速度对液滴在高频感应热等离子体中运动蒸发过程的作用,将低速和高速的模拟计算结果分别由两个图来进行展示。

图 2 不同尺寸液滴的半径 R 和表面温度的变化Fig. 2 The different sizes of droplet R and the changes of the surface temperature

由于液滴在高频感应热等离子体内运动,液滴吸收的环境热量使得溶剂蒸发,故液滴的尺寸亦随之变化,如图 3(a) 及图 3(b) 所示。在液滴进入热等离子体射流场的初始阶段,液滴所经历的环境温度较低,表面的蒸发速率较低,因此半径变化率较缓慢。随着液滴向较高温度的环境运动,蒸发速率逐渐升高,因此液滴尺寸迅速减小,直至表面溶质析出,停止计算。液滴的初始入射速度越大,液滴越深入热等离子体高温核心区,液滴表面溶剂蒸发越快,半径变化越小,溶质结晶析出所需时间越短。图 3(c) 及图 3(d) 分别表示不同入射速度液滴的表面温度曲线。随着液滴的初始入射速度的增大,液滴表面到达溶剂蒸发温度所需的时间减短,这是因为随着速度的增大,液滴更快地进入热等离子体的高温核心区,液滴迅速受热蒸发,表面溶质到达饱和浓度,形成结晶体。对于高速入射的 40 m/s 液滴,液滴进入热等离子体的初始阶段时间最短,因此液滴表面由于蒸发损失的热量不多,导致温度下降的不明显。而对于低速入射的 5 m/s 液滴,由于液滴在等离子体射流的低温区停留时间较长,因此液滴表面被蒸

汽带走的热量较多,温度下降的幅度较大。

2.3 不同入射尺寸下液滴内部的传热传质

本研究模拟了入射尺寸分别为 10、30 和 40 μm 液滴内部传热传质过程。液滴的初始质量浓度为 0.3, 初始温度为 300 K, 入射速度为 10 m/s, 比较了不同尺寸下液滴内部温度场和浓度场的变化。图 4(a) 所示为当溶液溶质达到临界浓度时, 所需时间及不同尺寸的液滴内部的温度和浓度的变化。虽然液滴所经历的热等离子体环境速度较高, 但由于其入射尺寸较小, 使得其还未完全进入热等离子体高温核心区, 溶剂就被环境热量蒸发, 溶质较早的析出。由于较小尺寸的液滴, 热量能很快的由液滴表面扩散至内部, 因而, 液滴表面与内部的温度梯度较小。而环境速度逐渐的降低, 液滴与热等离子体的相对速度也稍有减小, 内部温度及浓度分布呈现出扩散特性。液滴尺寸上的增大, 也加强了内部环流的作用, 因此, 较之较小尺寸的液滴, 内部环流呈现出较强的对流特性, 同时使得溶质在液滴表面聚集, 阻碍了溶剂向外部扩散和蒸发, 延长了溶质析出所需的时间。

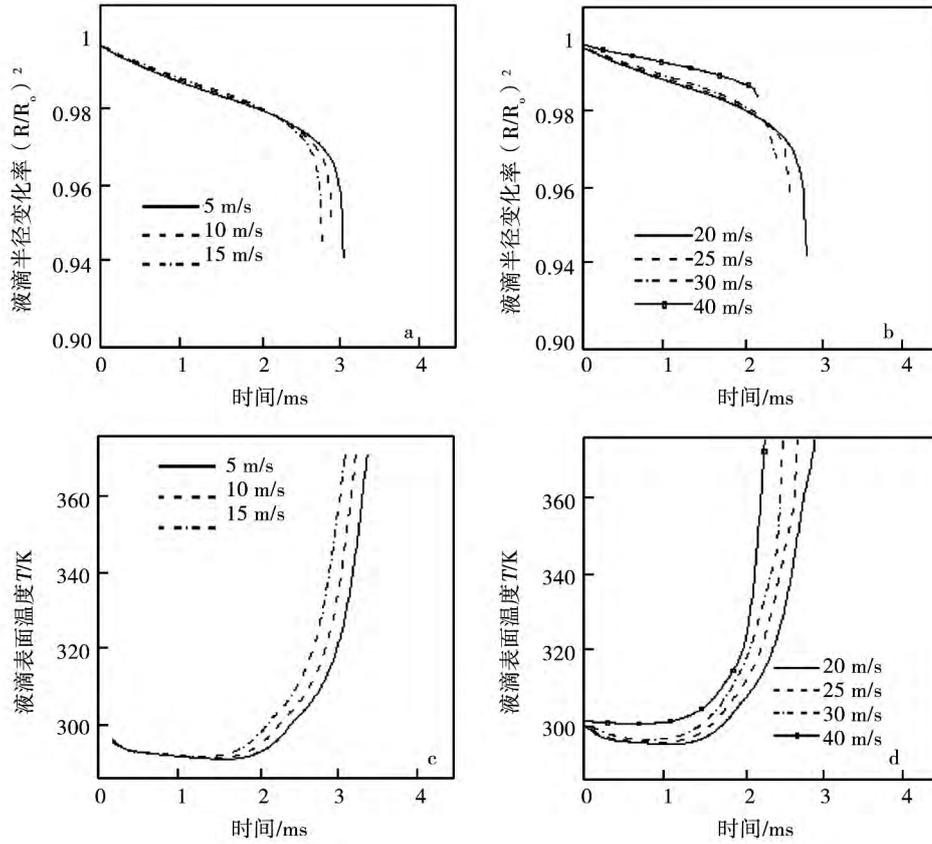


图3 不同入射速度的液滴半径 R 和表面温度的变化

Fig. 3 The different sizes of droplet R and the changes of the surface temperature

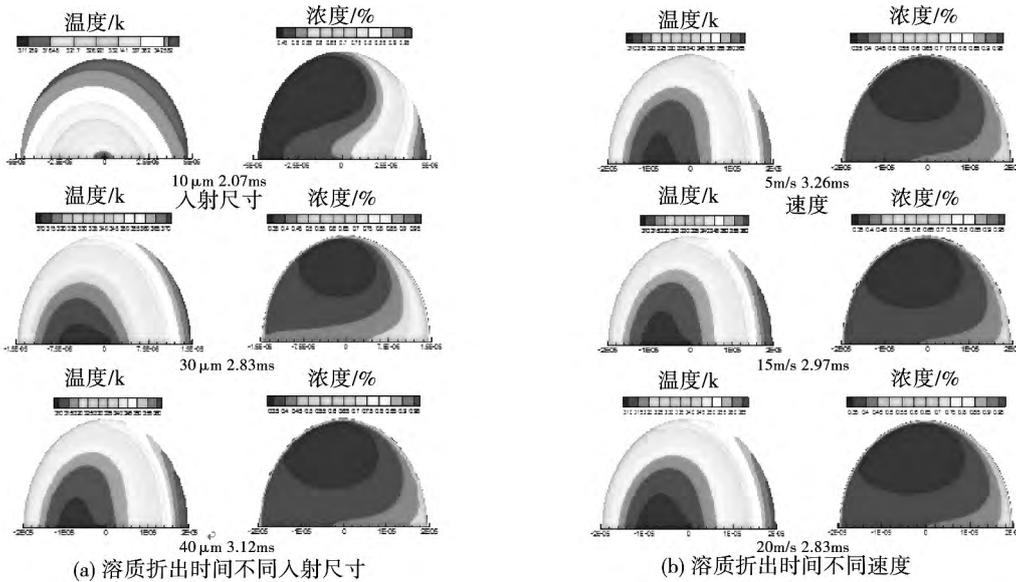


图4 不同入射尺寸和速度下液滴内部温度和浓度的变化

Fig. 4 Temperatures and solute concentration changes within the droplets for different initial sizes and injection velocities

2.4 不同入射速度下液滴内部的传热传质

液滴的初始入射速度是另一个影响液滴在高频感应热等离子体中运动和蒸发的重要因素。为了考察不同入射速度液滴内的温度及浓度分布,本节模拟 $40\ \mu\text{m}$ 液滴在不同入射速度下的内部传热传质过程,选取的入射速度分别为 5、15 和 $20\ \text{m/s}$,比较分析了不同入射速度的液滴在运动蒸发过程中,其内部的温度和浓度场的变化。

图 4(b) 所示为当溶液溶质达到临界浓度时,所需时间及不同入射速度的液滴内部的温度和浓度的变化。液滴由雾化喷口射出后所经历的环境温度较低,蒸发的溶剂会带走一部分热量,使得液滴表面温度低于初始温度 $300\ \text{K}$ 。而随着液滴进入热等离子体的高温区,液滴内部和表面的温度梯度增大,随着液滴溶剂的蒸发,液滴半径减小,表面浓度增大至 1.0,计算停止。随着液滴的入射速度的增大,液滴射入热等离子体的距离加深,经历的热等离子体环境温度增大,溶质析出所需时间缩短。由于入射速度的增加,液滴通过较低的环境温度区域的时间缩短,进入热等离子体高温核心区的时间越早,在 $1.7\ \text{ms}$ 时,液滴的表面温度开始上升。速度越快,经历的环境温度越高,液滴表面到达饱和浓度所需的时间越短。同时由于液滴的内部环流作用中对流特性占主导地位,因此液滴表面的溶质浓度较高,随着环境温度的上升,表面溶剂蒸发,浓度到达溶液饱和和质量分数,计算运行停止。

3 结 论

研究结果表明入射尺寸是影响颗粒破裂的重要因素,随着液滴初始尺寸的增大,在热等离子体低温区的停留时间越长,液滴表面缓慢而均匀的受热,表面溶质浓度到达饱和浓度的时间较长,半径变化率越小。另外,液滴初始入射速度越大,所经历的环境温度越高,液滴表面蒸发速度越快,半径变化越小,溶质结晶析出所需时间越短。同时在液滴进入热等离子体环境的初期,液滴与环境相对速度较大,内部环流的作用较为显著,而对流特性使得表面溶质较为集中。随着经历更高的环境温度,液滴表面溶剂迅速蒸发,浓度达到饱和浓度,形成固体壳层。

参考文献:

[1] FAUCHAIS P. Quo Vadis Thermal Spraying[J]. Journal of thermal

spray technology 2001, 10 (1): 44 - 66.

- [2] Shan ,Yanguang. Numerical simulation of aerosol droplets desolvation in a radio frequency inductively coupled plasma [J]. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy 2003, 58(11): 1959 - 1978.
- [3] 王 峰,王旭波. 溶液注入等离子喷涂——一种制备热障涂层的新技术[J]. 江苏陶瓷 2006, 39(6): 4 - 6.
WANG Feng, WANG Xu-bo. Solution into plasma spray, a new technique of prepare of thermal barrier coatings [J]. Jiang su Ceramics 2006, 39(6): 4 - 6.
- [4] 尹志坚,王树保. 热喷涂技术的演化与展望[J]. 无机材料学报 2011, 26(3): 225 - 232.
YIN Zhi-jian, WANG Shu-bao. Evolution and prospect of the thermal spraying technique [J]. Journal of organic materials 2011, 26(3): 225 - 232.
- [5] Rabiei A, Evans A G. Failure mechanisms associated with the thermally grown oxide in plasma sprayed thermal barrier coatings [J]. Acta Materialia 2000, 48(15): 3963 - 3976.
- [6] Schlichting K W. Failure modes in plasma sprayed thermal barrier coatings [J]. Materials Science and Engineering, 2003, 342(1 - 2): 120 - 130.
- [7] 万德成,戴世强,陈允明. 颗粒与高频感应热等离子体流的迭代计算[J]. 计算物理, 1997, 14(1): 90 - 98.
WAN De-cheng, DAI Shi-qiang, CHEN Yun-ming. Numerical iteration of plasma and particles flow in a RF plasma generator [J]. Computational Physics, 1997, 14(1): 90 - 98.
- [8] Shigeta M. Numerical investigation for nano - particle synthesis in an RF inductively coupled plasma [J]. Thin Solid Films 2004, 457(1): 192 - 200.
- [9] Yanguang Shan. Heat and mass transfer within an evaporating solution droplet in a plasma jet [J]. Journal of Thermal Spray Technology 2012, 21(3 - 4): 676 - 688.
- [10] Abramzon B. Droplet vaporization model for spray combustion calculations [J]. International Journal of Heat Transfer, 1989, 32(9): 1605 - 1618.
- [11] Tong A Y. Analysis of vaporizing droplet with slip, internal circulation, and unsteady liquid - phase and quasi - steady gas - phase heat transfer [J]. ASME/JSME Thermal Eng Joint Conf. Proc., 1983(2): 481 - 487.
- [12] Messing G L. Ceramic powder synthesis by spray pyrolysis [J]. Journal of the American Chemical Society, 1993, 76(11): 2707 - 2726.
- [13] Zhang S C. Synthesis of solid, spherical zirconia particles by spray pyrolysis [J]. Journal of the American Chemical Society, 1990, 73(1): 61 - 67.

(陈 滨 编辑)

the tube within the test range ($1300 < Re < 3500$) was summarized. **Key words:** convective flow inside a tube , Reynolds number ,corrugated plate flow disturber ,enhanced heat transfer

前驱体液滴在射频感应等离子体中的蒸发和传热传质 = **Evaporation ,Heat and Mass Transfer of the Precursor Liquid Drops in the Radio Frequency-induced Plasma** [刊 ,汉] SONG Zhuo-lin ,SHAN Yan-guang ,XU Lian-si (School of Energy Source and Power Engineering ,Shanghai University of Science and Technology ,Shanghai ,China ,Post Code: 200093) //Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. -2016 31(1) . -37 -41

A movement and evaporation model for liquid drops in a radio frequency-induced plasma jet flow was established to simulate the evaporation ,heat and mass transfer of the precursor liquid drops. According to the mass ,momentum and energy conservation equations ,a method for controlling time-changing systems was used to predict the movement and evaporation of the liquid drops inside the plasma induced and coupled by radio frequencies and obtain the changes in the radii of the liquid drops and temperature on the surface of liquid drops as well as temperature distribution inside the liquid drops. With an increase of the initial sizes of the liquid drops and their residence time duration in the low temperature zone of the hot plasma ,the surface of the liquid drops will be slowly and uniformly heated ,thus the time required by the surface solute concentration to reach its saturated concentration becomes longer and the changing rate of the radius smaller. With an increase of the initial speed of the liquid drops and the environmental temperature experienced by the liquid drops ,the evaporation speed of the liquid drops on the surface becomes quicker ,the change in the radius smaller and the time required by the solute to be crystallized and separated becomes shorter. **Key words:** radio frequency plasma ,evaporation ,heat and mass transfer

预热微通道内制冷剂对沸腾换热系数影响的实验研究 = **Experimental Study of the Influence of the Refrigerant Preheated on the Boiling Heat Exchange Coefficient Inside a Micro Channel** [刊 ,汉] GE Qi-lin ,LIU Jian-hua ,ZHANG Liang ,LIU Qi (College of Energy Source and Power Engineering ,Shanghai University of Science and Technology ,Shanghai ,China ,Post Code: 200093) //Journal of Engineering for Thermal Energy & Power. -2016 31(1) . -42 -47

In a stainless steel-made micro channel having an inner diameter of 2 mm ,an experimental study of the boiling heat exchange characteristics of the refrigerant R 290 was performed. The test conditions were given as follows: the mass flow rates of the refrigerant were 150 and 330 kg/m² . s respectively ,the heat flux densities of the refrigerant in the