

УДК 532.529.5; 66.021.3

Экспериментальное исследование межфазного массообмена при снарядном течении смеси этанол-СО₂ в прямоугольном микроканале*

Г.В. Барткус¹, Н.А. Филатов², А.С. Букатин^{2,3}, В.В. Кузнецов¹

¹*Институт теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН, Новосибирск*

²*Санкт-Петербургский национальный исследовательский академический университет им. Ж.И. Алфёрова РАН*

³*Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург*

E-mail: germanbartkus@gmail.com

Экспериментально изучена структура снарядного газожидкостного течения и межфазный массообмен при течении смесей этанол-N₂ и этанол-СО₂ в горизонтальном прямоугольном микроканале. Эксперименты проведены в прямом микроканале с сечением 380×190 мкм. Для определения изменения объема газового снаряда по длине микроканала использован метод высокоскоростной визуализации с цифровой обработкой. В широком диапазоне расходов газа измерены частота следования и объем газовых снарядов, их скорость, определен объемный коэффициент массоотдачи со стороны жидкости для смеси этанол-СО₂. Предложена физически обоснованная модель межфазного массообмена для снарядного течения в канале прямоугольного сечения, учитывающая циркуляционное течение в перемычке жидкости.

Ключевые слова: прямоугольный микроканал, газожидкостное течение, межфазный массообмен, растворение СО₂.

Введение

Микроканальные реакторы и теплообменники получают все более широкое распространение в технике вследствие высокой удельной площади контакта фаз и интенсификации процессов массообмена [1]. При сравнении объемных коэффициентов массоотдачи $k_L a$, достигаемых в различных массообменных аппаратах, например, в бромистолитиевых абсорберах [2], микрореакторы существенно опережают аналогичные аппараты и имеют большие перспективы применения в химических и биологических технологиях, в том числе для утилизации углекислого газа [3]. Для реализации преимуществ микроканалов необходимы детальные характеристики гидродинамики и процессов тепло- и массопереноса в микромасштабных системах, которые слабо изучены.

* Исследование выполнено при финансовой поддержке РНФ (проект № 21-19-00626).

Наиболее распространенными в микроканальных реакторах и теплообменниках являются каналы с прямоугольным сечением. Гидродинамика газожидкостных и двухжидкостных течений в прямоугольных микроканалах характеризуется большим разнообразием определяющих параметров, к которым относятся: отношение сторон канала, геометрия входного смесителя (перекрестный, Y-образный или T-образный смесители), отношение расходов фаз [4, 5]. Одним из наиболее распространенных режимов течения в микроканалах является снарядное течение (тейлоровское течение), которое характеризуется последовательностью удлиненных пузырей, отделенных жидкими перегородками [6]. Газовые снаряды отделены от стенки микроканала пленкой жидкости, а в перегородке жидкости возникает циркуляционное течение, наблюдаемое с использованием цифровой трассерной визуализации потоков (PIV) [7, 8] и показанное на рис. 1. На этом рисунке приведена схема течения в элементарной ячейке с обозначением участков пленки жидкости $L_{\text{film_bub}}$, слоя жидкости на стенке $L_{\text{film_slug}}$ и областей снаряда ($S_{\text{cap}} + S_{\text{film}}$), соответствующих различным значениям локального коэффициента массоотдачи, предложенная в работе [9].

Экспериментальные исследования межфазного массообмена при физической и химической абсорбции углекислого газа в жидкости для течения в микроканале выполнены в [8, 10, 11]. Для измерения объемного коэффициента массоотдачи в таких условиях использованы интегральные методы (титрование), измерение изменения объема газового снаряда при физической и химической абсорбции газа жидкостью [10, 11] и контрастная визуализация [8]. Для определения коэффициента массоотдачи при абсорбции углекислого газа жидкостью в ряде работ использована модель полного смешения [10], которая находится в противоречии с результатами контрастной визуализации [8].

В работах [9, 12] предложена наиболее детальная математическая модель массообмена при снарядном течении в микроканале круглого сечения, рассмотрены различные механизмы массопереноса в рамках элементарной ячейки (см. рис. 1): совместный массоперенос из головной и хвостовой частей снаряда (S_{cap}) в перегородку жидкости (синий цвет); массоперенос из боковой части снаряда в пленку жидкости в области снаряда, имеющей длину $L_{\text{film_bub}}$ (зеленый цвет) и массоперенос между тонким пристенным слоем жидкости длиной $L_{\text{film_slug}}$ (желтый цвет) и жидкостью в перегородке. Предложенный в [9] подход позволяет рассчитать изменение концентрации по длине канала в перегородке жидкости C_{slug} и пленке C_{film} и определить интегральный коэффициент массоотдачи для канала круглого сечения.

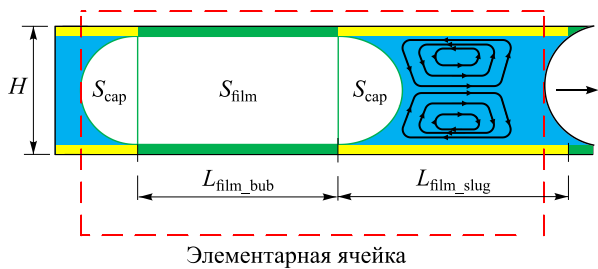


Рис. 1. Схема элементарной ячейки для снарядного течения с обозначением участков пленки жидкости $L_{\text{film_bub}}$, слоя жидкости на стенке $L_{\text{film_slug}}$ и областей снаряда ($S_{\text{cap}} + S_{\text{film}}$), соответствующих различным значениям коэффициента массоотдачи.

Направление течения показано стрелкой.

Целью настоящей работы является экспериментальное исследование гидродинамики и межфазного массообмена при снарядном газожидкостном течении смесей этанол–азот и этанол–углекислый газ в горизонтальном прямоугольном микроканале с сечением 380×190 мкм с Т-образным боковым смесителем. Новизна состоит в применении оптической системы с высоким разрешением (3,57 мкм/пиксел) для регистрации изменения объема снаряда вследствие поглощения газа жидкостью и новом подходе к определению коэффициента массоотдачи в прямоугольном микроканале на основе моделей [9] и [12], учитывающем локальную структуру циркуляционного течения в перемычке жидкости.

Экспериментальная установка и методики измерения

Схема экспериментального стенда для исследования структуры газожидкостного течения представлена на рис. 2а. Углекислый газ или азот поступал из баллона высокого давления через редуктор на вход в контроллер расхода газа Bronkhorst EL-FLOW F-201CV и далее в смеситель микроканала для формирования газожидкостного течения. Перед входом в канал располагался тройник, одно плечо которого было подключено к датчику давления HoneyWell 40PC015G, второе плечо — к контроллеру расхода, третье — на вход в микроканал. Питание датчика обеспечивалось источником питания Gwinstek GPR-3060D. Сигнал датчика давления записывался с помощью высокоскоростного АЦП ZETLab 210 и затем обрабатывался на компьютере. При определении объемного расхода газа в заданном сечении Q_{gas} микроканала вводится поправка на плотность газа в этом сечении, которая определяется по давлению в соответствии со справочными данными [13]. Давление определяется с использованием линейной аппроксимации изменения давления по длине рабочего участка. Приведенная скорость фаз определена как объемный расход, отнесенный к площади сечения микроканала $J_{\text{liq,gas}} = Q_{\text{liq,gas}} / S$.

Жидкость под избыточным давлением, создаваемым азотом из баллона высокого давления, поступала из емкости для жидкости в термомассовый регулятор расхода жидкости Bronkhorst LIQUI-FLOW L30 и далее в смеситель микроканала. На выходе газожидкостная смесь стекала в открытый бак, при этом газ уходил в атмосферу. Для проведения экспериментов всегда использовалась новая жидкость.

Регистрация структуры газожидкостного течения производилась с помощью высокоскоростной камеры Optronis CR600x2 и объектива 6,3x ausJENA Planachromat в начале микроканала после смешения и в конце микроканала. Камера и LED-источник располагаются по разные стороны от прозрачного микроканала по нормали к его поверхности. Это позволило получить разрешение 3,57 мкм/пиксел при частоте съемки 2000 кадр/с. Пакет программ DMV [14] использован для обработки изображений.

Микроканал изготовлен из материала PDMS методом мягкой литографии в Санкт-Петербургском национальном исследовательском академическом университете им. Ж.И. Алфёрова РАН [15]. Микроканал имел прямоугольное сечение 380×190 мкм, его схема показана на рис. 2б. После сборки канала его ширина определялась с помощью оптического микроскопа с использованием усреднения для 10 измерений по длине канала, глубина канала определялась при фокусировании на верхнюю и нижнюю стенки микроканала. Неопределенность измерения ширины канала составила $\pm 4,2$ мкм, глубины — $\pm 3,5$ мкм.

Формирование газожидкостного течения происходило в боковом Т-образном миксере (см. рис. 2б). Ввод газа был перпендикулярен к потоку жидкости. Поверхность канала из PDMS является гидрофобной для воды, и в качестве рабочей жидкости был

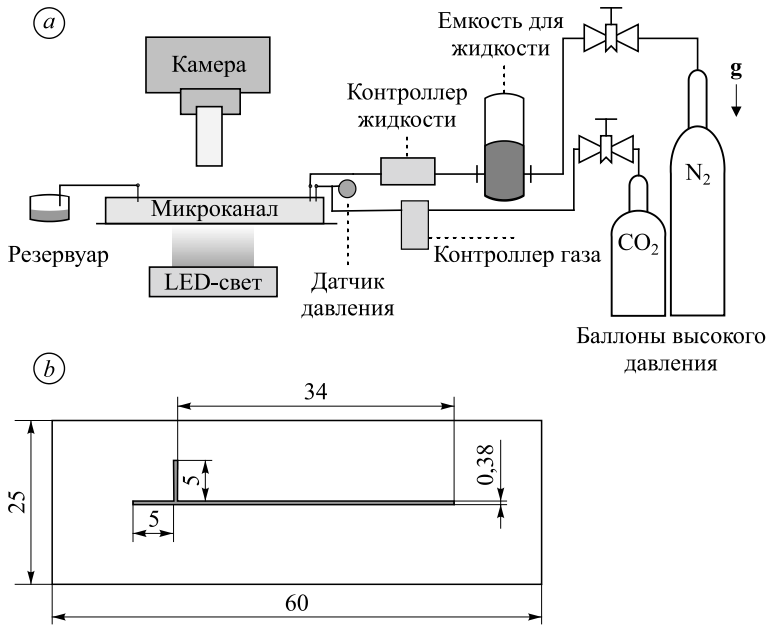


Рис. 2. Схемы экспериментальной установки (а) и микроканала с Т-образным боковым входом (b). Размеры указаны в мм.

выбран 90%-й (по массе) водный раствор этанола (далее — этанол), с коэффициентом диффузии $D_{\text{diff}} = 3,527 \text{ м}^2/\text{с}$, который хорошо смачивает поверхность канала. Измерения контактного угла на поверхности PDMS показали среднее значение, равное $(23 \pm 3)^\circ$. В качестве газов были выбраны азот (эксперименты без массообмена) и углекислый газ (эксперименты с массообменом).

Характеристики газожидкостного течения для смеси этанол–N₂ в микроканале

Для определения характеристик газожидкостного течения в микроканале при отсутствии массообмена проведена серия экспериментов для течения смеси этанол–азот. Экспериментальное исследование было необходимо для обоснования разработанной методики определения объема газового снаряда, которая далее применялась при определении объемного коэффициента массоотдачи для течения смеси этанол–углекислый газ в условиях интенсивного межфазного массообмена. Эксперименты проведены в диапазоне приведенных скоростей газа $J_{\text{gas}} = 0,09 - 0,48 \text{ м/с}$ при $J_{\text{liq}} = 0,1 \text{ м/с}$, когда реализуется периодический снарядный режим течения. На рис. 3а приведена характерная структура периодического течения смеси этанол–азот в прямоугольном микроканале для приведенной скорости жидкости $J_{\text{liq}} = 0,1 \text{ м/с}$ и газа $J_{\text{gas}} = 0,18 \text{ м/с}$, полученная на расстоянии 3 мм от смесителя. Как видно, течение представляет собой чередование газовых снарядов и жидких перемычек, что в полной мере соответствует схеме течения в элементарной ячейке (см. рис. 1). Сравнение размеров снарядов в области смесителя и в конце канала показало увеличение объема газовых снарядов по длине канала вследствие падения давления.

Для определения контуров снаряда использовался параллельный пучок света. На рис. 3а светлые контуры были построены с использованием пакета программ для обработки изображений DMV [14]. При обработке изображений снарядов определялась площадь

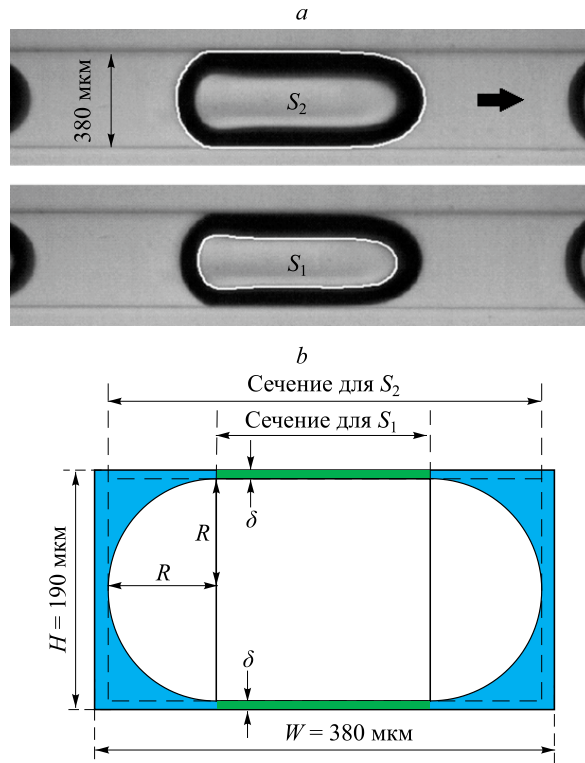


Рис. 3. Методика измерения объема газового снаряда (а): измеряемый контур внешней границы снаряда S_2 и внутренней границы снаряда S_1 и схема поперечного сечения микроканала с менисками жидкости в углах и пленкой жидкости на стенках (б).

снаряда по внешнему контуру S_2 для количества снарядов не менее 100 в рамках одного режима. Для аналогичного набора снарядов определялась площадь по внутреннему контуру S_1 . Внутренняя и внешняя границы контуров снарядов S_2 и S_1 (см. рис. 3а) определялись по относительному пороговому значению градации серого, которое задавалось и варьировалось в узком диапазоне, описывая контуры снаряда.

С использованием полученных контуров объем снаряда определялся для его поперечного сечения (см. рис. 3б). Объем определялся в предположении равномерной толщины пленки жидкости δ вдоль и поперек снаряда [16]. Толщина пленки определялась по закону Тейлора [17] в зависимости от измеренной скорости газового снаряда U_{bub} :

$$\frac{\delta}{D_h} = \frac{0,67\text{Ca}^{2/3}}{1 + 3,35\text{Ca}^{2/3}}, \quad (1)$$

где D_h — гидравлический диаметр, $\text{Ca} = U_{\text{bub}}\mu/\sigma$ — капиллярное число. Закон Тейлора был получен для среднего значения толщины пленки жидкости в канале круглого сечения. В каналах прямоугольной формы распределение пленки жидкости неравномерное и образуются тонкая пленка жидкости вдоль длинной стороны микроканала и мениски жидкости на короткой стороне канала (см. рис. 3б). В [18] было показано, что для каналов прямоугольной формы средняя толщина пленки больше, чем предсказанная по закону Тейлора, и он может быть использован только для оценки средней толщины пленки жидкости в снаряде.

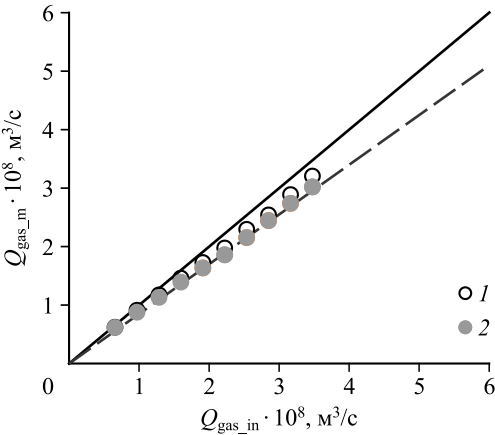


Рис. 4. Сравнение измеренного расхода газа $Q_{\text{gas_m}}$, определенного по сумме объемов газовых снарядов на входе (1) и выходе (2) микроканала, с расходом $Q_{\text{gas_in}}$, поданным с контроллера расхода, для течения смеси этанол – N_2 .

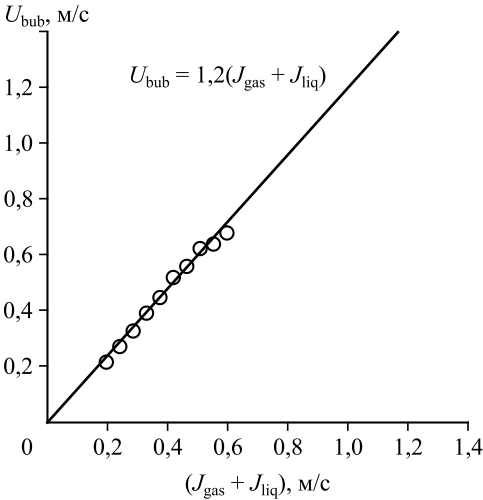


Рис. 5. Зависимость скорости снарядов от приведенной скорости смеси на расстоянии 6 мм от выхода канала.

Используя (1) и схему сечения снаряда (см. рис. 3б), получим уравнение для расчета объема газового снаряда по измеренным значениям площадей сечения внешнего и внутреннего контуров S_1, S_2 в виде

$$V_{\text{bub}} = S_1(H - 2\delta) + (S_2 - S_1)(H - 2\delta)k, \quad (2)$$

где $k = (\pi R^2/2)/(2R^2)$. С помощью уравнения (2) был определен объем газовых снарядов в начале и конце канала, после чего с учетом частоты следования снарядов f по формуле $Q_{\text{gas_m}} = V_{\text{bub}} \cdot f$ был определен измеренный объемный расход газа в начале и конце канала. Путем подбора параметра порогового значения в программе DMV было определено пороговое значение 0,25, при котором сравнение объемного расхода, полученного через объем снаряда по формуле (2) и частоте снарядов, с объемным расходом, определенным контроллером, давало отличие не более 10 %.

На рис. 4 приведено сравнение измеренного расхода газа $Q_{\text{gas_m}}$, определенного по объему снарядов на входе и выходе микроканала, с расходом $Q_{\text{gas_in}}$, поданным с контроллера газа. На рис. 4 видно, что объемный расход газа увеличивается на выходе из микроканала вследствие падения давления и отклонение объемного расхода, определенного через объем снаряда, не превышает 10 % объемного расхода, определенного контроллером, для всего диапазона измерений. Описанная методика определения размера газовых снарядов была использована для расчета объемного коэффициента массоотдачи при течении смеси этанол – CO_2 .

Зависимость скорости газовых снарядов в конце канала U_{bub} от приведенной скорости смеси представлена на рис. 5. Скорость газового снаряда U_{bub} связана с приведенной скоростью смеси: $U_{\text{bub}} = c(J_{\text{liq}} + J_{\text{gas}})$, где c — параметр распределения. На рис. 5 видно, что параметр распределения в микроканале зависит от приведенной скорости смеси и равен $c = 1,2$ для значения $J_{\text{tp}} = 0,5$ м/с, что показывает существенное отклонение объемного газосодержания от расходного газосодержания. Коэффициент скольжения $w = (U_{\text{bub}} - J_{\text{tp}})/U_{\text{bub}}$

связан с параметром распределения следующим образом: $w = c - 1$, коэффициент скольжения равен 0,2 для приведенной скорости смеси $J_{\text{пр}} = 0,5$ м/с.

Структура газожидкостного течения и межфазный массообмен при поглощении CO_2 этанолом

Измерение объемного коэффициента массоотдачи при поглощении углекислого газа этанолом выполнено для периодического снарядного режима течения в диапазоне приведенных скоростей газа и жидкости, ранее исследованном для течения смеси этанол– N_2 .

На рис. 6 показана структура течения смеси этанол– CO_2 для приведенных скоростей $J_{\text{liq}} = 0,11$ м/с, $J_{\text{gas}} = 0,33$ м/с после смесителя (а) и в конце микроканала (б). Наблюдаемое уменьшение размера снаряда в конце канала происходит вследствие поглощения газа жидкостью в результате физической абсорбции. В экспериментах определено среднее значение коэффициента массоотдачи по изменению объема газового снаряда на длине 25 мм при измеренном объеме на расстоянии 3 мм после смесителя и 6 мм от выхода из микроканала.

Для определения объемного коэффициента массоотдачи использовано балансовое уравнение для изменения концентрации газа во всей жидкости в рамках элементарной ячейки с объемом V_{UC} (см. рис. 1). В предположении однородной концентрации растворенного газа в жидкой перемычке и пленке жидкости постоянного объема V_{slug} уравнение для изменения концентрации растворенного газа записывается следующим образом:

$$V_{\text{slug}} \frac{dC}{dt} = k_L A_{\text{bub}} (C_* - C), \quad (3)$$

где C — концентрация растворенного газа в жидкости в рамках элементарной ячейки, k_L — средний коэффициент массоотдачи на поверхности газового снаряда, C_* — равновесная концентрация растворенного газа, A_{bub} — площадь контакта фаз газ–жидкость в снаряде. Равновесная концентрация CO_2 в 90%-м растворе этанола для условий эксперимента равна $C_* = 81,1$ моль/м³ [19].

Учитывая, что скорость движения снаряда равна U_{bub} , проведем интегрирование (3) по длине участка измерения массоотдачи L и получим изменение концентрации раство-

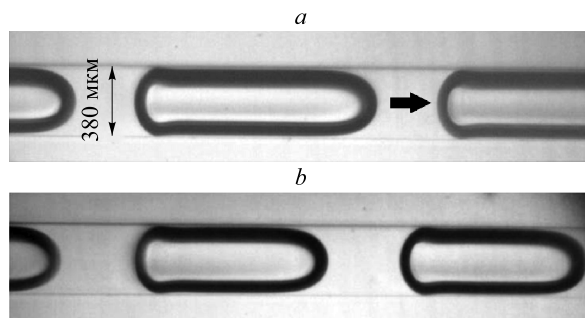


Рис. 6. Фотографии течения смеси этанол– CO_2 в прямоугольном микроканале для приведенных скоростей $J_{\text{liq}} = 0,11$ м/с, $J_{\text{gas}} = 0,33$ м/с на расстоянии 3 мм после смесителя (а) и 6 мм от выхода канала (б).

Направление течения указано стрелкой.

ренного газа в жидкой перемычке на расстоянии L в виде

$$k_L a = (1 - \varphi) \frac{U_{\text{bub}}}{L_{\text{chan}}} \ln \left(\frac{C_* - C_0}{C_* - C_L} \right), \quad (4)$$

где $\varphi = V_{\text{bub}}/V_{\text{UC}}$ — объемное газосодержание, $V_{\text{slug}} = (1 - \varphi)V_{\text{UC}}$.

В ряде работ (например, [20]) предполагалось, что объемное газосодержание равно расходному: $\varphi = \beta$. В этом случае выражение (4) принимает вид, используемый в этих работах для обработки экспериментальных данных:

$$k_L a = \frac{J_{\text{liq}}}{L_{\text{chan}}} \ln \left(\frac{C_* - C_0}{C_* - C_L} \right). \quad (5)$$

Учитывая, что параметр распределения $c = 1,2$ (см. рис. 5), для газожидкостного течения в прямоугольном микроканале наблюдается существенное проскальзывание газовой фазы относительно жидкой фазы, поэтому при обработке данных по массообмену необходимо использовать уравнение (4), а не (5).

Для определения начальной концентрации растворенного газа необходимо учитывать интенсивное растворение в области формирования снарядов в смесителе. Поскольку в смеситель подавался этанол с нулевой начальной концентрацией углекислого газа, концентрация растворенного газа в жидкой перемычке в начале участка измерения массоотдачи определялась по измерениям расхода газа контроллером до смесителя, частоте следования и среднему размеру снарядов на расстоянии 3 мм от смесителя:

$$C_0 = \frac{v_0 - v_{\text{in}}}{V_{\text{slug}}},$$

здесь v_0 , v_{in} — количество молей в снаряде, определенное по измеренному расходу до и после смесителя соответственно:

$$v_i = \frac{P_i V_{\text{bub},i}}{RT}.$$

Таким же образом определялась и концентрация растворенного газа в конце участка измерения массоотдачи C_L на расстоянии 6 мм от выхода из микроканала. Полученные концентрации поглощенного углекислого газа были использованы для определения объемного коэффициента массоотдачи.

Для сопоставления полученных данных с расчетом по одночленному уравнению, предложенному в [20], проведена обработка данных изменения концентрации в жидкой перемычке с использованием уравнения (5). На рис. 7а приведена зависимость объемного коэффициента массоотдачи для течения смеси этанол–CO₂ в прямоугольном микроканале от приведенной скорости газа, полученная из уравнения (5). На рис. 7а наблюдается небольшое увеличение коэффициента массоотдачи, а затем его уменьшение с ростом приведенной скорости газа. Треугольными маркерами на этом рисунке показаны результаты расчета по одночленному уравнению из работы [20], которое обобщает экспериментальные данные, полученные для течения смеси вода–CO₂ в канале с сечением 0,5×1,0 мм. Как видно, результаты расчета по методике [20] существенно отличаются от экспериментальных данных для смеси этанол–CO₂ для малых и больших приведенных значений скорости газа. Отсюда следует ограниченная применимость одночленного

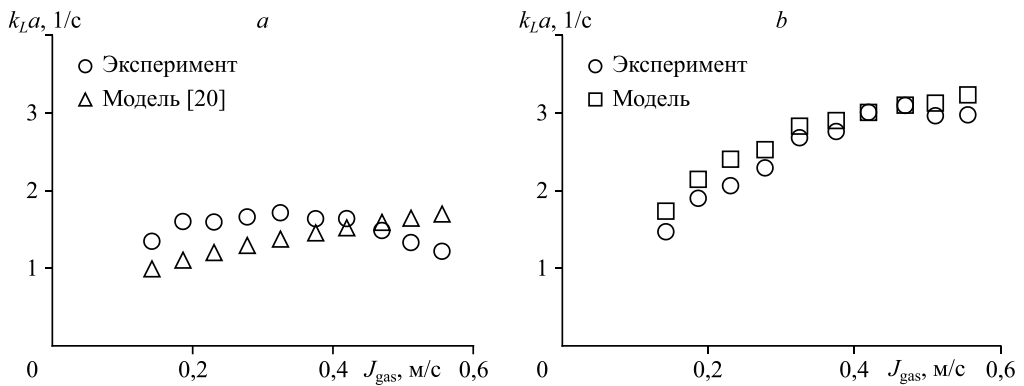


Рис. 7. Зависимость от приведенной скорости газа объемного коэффициента массоотдачи $k_L a$, рассчитанного по формуле (5) в сравнении с моделью из работы [20] (а) и рассчитанного по формуле (4) в сравнении с моделью (6)–(11) (б).

уравнения [20] для расчета межфазного массообмена при газожидкостном течении в микроканале.

На рис. 7б представлена зависимость объемного коэффициента массоотдачи от приведенной скорости газа для течения смеси этанол– CO_2 в прямоугольном микроканале, рассчитанного по уравнению (4). Такой подход в большей степени соответствует полученным данным, так как скорость снарядов существенно отличается от приведенной скорости смеси. В данном случае наиболее обоснованной является модель массообмена, предложенная в работе [9] для микроканала круглого сечения. В этой модели рассматривается массоперенос в трех зонах течения, показанных на рис. 1, которые включают головную и хвостовую части снаряда, пленку жидкости в области снаряда и тонкий пристенный слой жидкости в области перемычки жидкости. Выделение пристенного слоя жидкости в области перемычки жидкости связано с наблюдаемой в экспериментах и расчетах [21] областью рециркуляционного движения в перемычке жидкости (рис. 8а). Как видно, пристенный слой жидкости в жидкой перемычке не участвует в циркуляционном движении и ограничен разделяющей изолинией скорости.

Для представленной на рис. 1 схемы течения в прямоугольном микроканале уравнения из [9] для расчета концентрации поглощенного газа в перемычке жидкости C_{slug} и расчета концентрации поглощенного газа в пленке и слое жидкости на стенке C_{film} записываются как балансовое уравнение для концентрации поглощенного газа в перемычке жидкости объемом V_{slug} :

$$V_{\text{slug}} \frac{dC_{\text{slug}}}{dt} = (k_L a)_{\text{caps}} [C_* - C_{\text{slug}}(t)] V_{\text{UC}} + (k_L)_{\text{film_slug}} A_{\text{film_slug}} [C_{\text{film}}(t) - C_{\text{slug}}(t)] \quad (6)$$

и балансовое уравнение для концентрации поглощенного газа в пленке жидкости:

$$q_{\text{film}} \frac{dC_{\text{film}}}{dz} = (k_L)_{\text{film_bub}} a_{\text{film_bub}} [C_* - C_{\text{film}}(z)] - (k_L)_{\text{film_slug}} a_{\text{film_slug}} [C_{\text{film}}(z) - C_{\text{slug}}(z)], \quad (7)$$

где q_{film} — объемный расход в пленке жидкости в прямоугольном микроканале; $(k_L a)_{\text{caps}}$, $(k_L a)_{\text{film_bub}}$, $(k_L a)_{\text{film_slug}}$ — объемные коэффициенты массоотдачи для передней и задней частей снаряда в перемычке жидкости, от боковой части снаряда в пленку жидкости и от тонкого пристенного слоя жидкости в жидкую перемычку соответственно; $A_{\text{film_slug}}$ — площадь контакта между слоем жидкости на стенке и перемычкой жидкости, рассчитанная по измеренным значениям длины $L_{\text{film_slug}}$ и толщины пленки δ ; $a_{\text{film_slug}}$ — площадь контакта на объем элементарной ячейки. Объемы перемычки жидкости и пленки жидкости под газовым снарядом в продольном и поперечном сечениях прямоугольного микроканала отмечены на рис. 1 и 3 синей и зеленой областями. Средняя концентрация растворенного газа в жидкости в рамках элементарной ячейки C_{UC} рассчитывается как сумма концентраций C_{slug} и C_{film} , полученных в результате численного решения и умноженных на соответствующие объемы:

$$C_{\text{UC}} = \frac{V_{\text{film}} C_{\text{film}} + V_{\text{slug}} C_{\text{slug}}}{V_{\text{film}} + V_{\text{slug}}}. \quad (8)$$

Далее C_{UC} используется для определения полного объемного коэффициента массоотдачи по (4).

Особенностью расчета коэффициента массоотдачи в канале с прямоугольным сечением является то, что при расчете необходимо использовать не всю поверхность передней и хвостовой частей снаряда, а только часть поверхности $S_{\text{caps_lim}}$ до линии тока, отделяющей зону циркуляции от течения в пристенном слое жидкости (см. рис. 8а) [21]. Поперечное сечение канала с разделительной изолинией для канала с соотношением сторон 2,5 для коэффициента скольжения $w = 0,2$ из [21] показано на рис. 8b. Эти данные

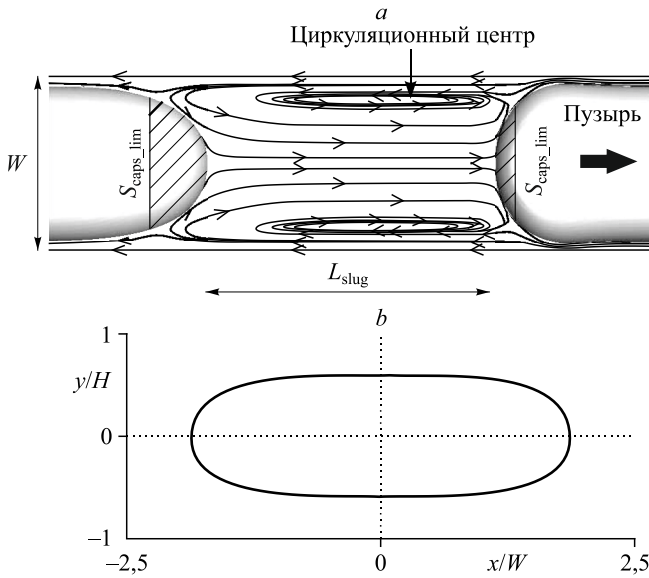


Рис. 8. Схематическое представление рециркуляционной зоны в жидкой перемычке по [21] (а) и контур разделительной изолинии рециркуляционной зоны в поперечном сечении канала с соотношением сторон 2,5 при $w = 0,2$ (b).

были использованы для расчета удельной поверхности передней и хвостовой частей снаряда a_{caps} , соответствующей внутренней рециркуляционной зоне в перемычке жидкости, характерной длины и скорости жидкости в зоне циркуляции. С учетом этого коэффициенты массоотдачи для передней и задней частей снаряда, в пленке жидкости под снарядом и тонком слое на стенке в жидкой перемычке равны

$$(k_L)_{\text{caps}} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{D_{\text{diff}} U_{\text{circ}}}{L_{\text{circ}}}}, \quad (9)$$

$$(k_L)_{\text{film_bub}} = \frac{2}{16\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{D_{\text{diff}} U_{\text{bub}}}{L_{\text{film_bub}}}}, \quad (10)$$

$$(k_L)_{\text{film_slug}} = 4,11 \frac{D_{\text{diff}}}{D_h}. \quad (11)$$

При расчетах скорость циркуляции $U_{\text{circ}} = 0,37U_{\text{bub}}$ и длина дуги L_{circ} от переднего края до точки на поверхности снаряда, соответствующей центру рециркуляционного контура, аналогичны результатам расчета [21] для канала с соотношением сторон 2,5. При расчете массообмена в пленке жидкости необходимо учитывать концентрационную неоднородность в пленке, что приводит к снижению потока растворяющегося компонента на границе газ – жидкость [21]. Обработка полученных экспериментальных данных показала, что наилучшее совпадение результатов расчета и эксперимента для прямоугольного канала наблюдается при использовании понижающего коэффициента 1/16 в уравнении (10). Уравнение (11) для расчета массоотдачи в тонком слое жидкости на стенке микроканала с соотношением сторон 2 основано на аналогии процессов тепло- и массообмена [22].

Сопоставление экспериментальных данных с расчетом по разработанной методике показано на рис. 7b. Как видно, результаты расчета для всех приведенных скоростей газа со средней относительной ошибкой (mean percentage error) $\text{MPE} = 5,6 \%$ хорошо соответствуют экспериментальным данным и показывают достижение предельного значения коэффициента массоотдачи при скорости газа больше 0,4 м/с. Уменьшение коэффициента массоотдачи, определенного по (4), по сравнению с расчетом при скорости газа больше 0,4 м/с может быть связано с приближением к границе переходного режима, когда нарушается периодичность течения.

Заключение

В настоящей работе представлены результаты экспериментального исследования гидродинамики и межфазного массообмена при поглощении углекислого газа этанолом в прямоугольном микроканале сечением 380×190 мкм. Проведенные эксперименты по исследованию структуры периодического снарядного режима течения смеси 90%-й этанол – азот позволили обосновать новый метод определения объема снарядов по данным скоростной видеосъемки течения. Получено, что неопределенность в измерении объема газового снаряда по данной методике не превышает 10 %. Выполнены эксперименты, направленные на изучение межфазного массообмена при течении смеси 90%-й этанол – углекислый газ для периодического снарядного режима течения. С использованием данных по изменению объема снаряда вследствие поглощения газа определен объемный коэффициент массоотдачи и получена его зависимость от приведенной скорости газа.

Предложена физически обоснованная модель межфазного массообмена, которая является развитием подхода из работы [9] на случай газожидкостного течения в канале прямоугольного сечения и учитывает характеристики рециркуляционного течения в перемычке жидкости, расчеты по которой хорошо соответствуют полученным данным для периодического снарядного течения.

Обозначения

D — диаметр, м,	f — частота генерации снарядов, Гц,
L — длина, м,	S, A — площадь, межфазная площадь, м^2 ,
H, W — высота канала и ширина микроканала, м,	ν — количество молей вещества, моль,
t — время, с,	C — концентрация CO_2 в жидкости, моль/ м^3 ,
J — приведенная скорость, м/с,	C_* — равновесная концентрация CO_2 в жидкости,
U — скорость, м/с,	моль/ м^3 ,
Q, q — объемный расход, $\text{м}^3/\text{с}$,	D_{diff} — коэффициент диффузии, $\text{м}^2/\text{с}$,
P — давление, Па,	k_L — поверхностный коэффициент массоотдачи, м/с,
R — газовая постоянная, Дж/(моль·К),	a — удельная поверхность контакта фаз, $\text{м}^2/\text{м}^3$,
T — температура, К,	$k_L a$ — объемный коэффициент массообмена, 1/с.
V — объем, м^3 ,	

Безразмерные комплексы

$\text{Ca} = U_{\text{bub}} \mu / \sigma$ — капиллярное число,	$w = (U_{\text{bub}} - U_{\text{тр}}) / U_{\text{bub}}$ — коэффициент скольжения.
$c = U_{\text{bub}} / (J_{\text{liq}} + J_{\text{gas}})$ — коэффициент распределения,	

Греческие символы

α_c — соотношение сторон,	μ — динамическая вязкость, Па·с,
δ — толщина пленки жидкости, м,	σ — коэффициент поверхностного натяжения, Н/м.

Индексы

0 — начальный,	bub — снаряд,
in — входное значение,	caps — передняя и задняя торцевые области снаряда,
out — выходное значение,	UC — элементарная ячейка,
h — гидравлический,	slug — перемычка жидкости,
lig — жидкость,	film — пленка жидкости,
gas — газ,	circ — циркуляция,
tr — двухфазный,	m — измеренный.

Список литературы

1. Günther A., Jensen K.F. Multiphase microfluidics: from flow characteristics to chemical and materials synthesis // Lab. Chip. The Royal Soc. Chemistry. 2006. Vol. 6, No. 12. P. 1487–1503.
2. Буфетов Н.С., Дехтярь Р.А., Овчинников В.В. Исследование переходных режимов при абсорбции пара водным раствором бромида лития // Теплофизика и аэромеханика. 2021. Т. 28, № 1. С. 131–143.
3. Aghel B., Heidaryan E., Sahraie S., Mir S. Application of the microchannel reactor to carbon dioxide absorption // J. Clean. Prod. 2019. Vol. 231. P. 723–732.
4. Чиннов Е.А., Роньшин Ф.В., Кабов О.А. Режимы двухфазного течения в микро- и миниканалах (обзор) // Теплофизика и аэромеханика. 2015. Т. 22, № 3. С. 275–297.
5. Yagodnitsyna A.A., Kovalev A.V., Bilsky A.V. Flow patterns of immiscible liquid-liquid flow in a rectangular microchannel with T-junction // Chem. Engng. J. 2016. Vol. 303. P. 547–554.
6. Yin Y., Zhang X., Zhu C., Fu T., Ma Y. Hydrodynamics and gas-liquid mass transfer in a cross-flow T-junction microchannel: Comparison of two operation modes // Sep. Purif. Technol. 2021. Vol. 255. P. 117697-1–117697-4.
7. Zaloha P., Kristal J., Jiricny V., Völkel N., Xuereb C., Aubin J. Characteristics of liquid slugs in gas-liquid Taylor flow in microchannels // Chem. Eng. Sci. 2012. Vol. 68, No. 1. P. 640–649.
8. Butler C., Lalanne B., Sandmann K., Cid E., Billet A.-M. Mass transfer in Taylor flow: Transfer rate modelling from measurements at the slug and film scale // Intern. J. Multiph. Flow. 2018. Vol. 105. P. 185–201.

9. Butler C., Cid E., Billet A.-M. Modelling of mass transfer in Taylor flow: Investigation with the PLIF-I technique // Chem. Eng. Res. Des. 2016. Vol. 115. P. 292–302.
10. Yue J., Chen G., Yuan Q., Luo L., Gonthier Y. Hydrodynamics and mass transfer characteristics in gas–liquid flow through a rectangular microchannel // Chem. Eng. Sci. 2007. Vol. 62, No. 7. P. 2096–2108.
11. Yao C., Zhao Y., Zheng J., Zhang Q., Chen G. The effect of liquid viscosity and modeling of mass transfer in gas–liquid slug flow in a rectangular microchannel // aiche J. 2020. Vol. 66, No. 5. P. E16934. — <http://doi.org/10.1002/aic.16934>.
12. Van Baten J.M., Krishna R. CFD simulations of mass transfer from Taylor bubbles rising in circular capillaries // Chem. Eng. Sci. 2004. Vol. 59, No. 12. P. 2535–2545.
13. Варграфтик Н.Б. Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей. М.: Наука, 1972. 720 с.
14. Basu A.S. Droplet morphometry and velocimetry (DMV): a video processing software for time-resolved, label-free tracking of droplet parameters // Lab. Chip. The Royal Soc. Chem. 2013. Vol. 13, No. 10. P. 1892–1901.
15. Букатин А.С., Мухин И.С., Малышев Е.И., Кухтевич И.В., Евстапов А.А., Дубина М.В. Особенности формирования микроструктур с высоким аспектным соотношением при изготовлении полимерных микрофлюидных чипов для исследования единичных живых клеток in vitro // Журн. Техн. Физики. 2016. Т. 61, № 10. С. 1566–1571.
16. Chaoqun Y., Yuchao Z., Chunbo Y., Minhui D., Zhengya D., Guangwen C. Characteristics of slug flow with inertial effects in a rectangular microchannel // Chem. Eng. Sci. 2013. Vol. 95. P. 246–256.
17. Aussillous P., Quéré D. Quick deposition of a fluid on the wall of a tube // Phys. Fluids. 2000. Vol. 12, No. 10. P. 2367–2371.
18. Bartkus G.V., Kuznetsov V.V. Application of the laser-induced fluorescence to study local characteristics of a gas–liquid flow in rectangular microchannel // J. Physics: Conf. Series. 2021. Vol. 2127, No. 1. P. 012008–012008-6.
19. Yao C., Dong Z., Zhao Y., Chen G. An online method to measure mass transfer of slug flow in a microchannel // Chem. Eng. Sci. 2014. Vol. 112. P. 15–24.
20. Yue J., Chen G., Yuan Q., Luo L., Le Gall H. Mass transfer in gas–liquid flow in microchannels // CIESC J. 2006. Vol. 57, No. 6. P. 1296–1303.
21. Abadie T., Xuereb C., Legendre D., Aubin J. Mixing and recirculation characteristics of gas–liquid Taylor flow in microreactors // Chem. Engng Res. Des. 2013. Vol. 91, No. 11. P. 2225–2234.
22. Kandlikar S., Garimella S., Li D., Colin S., King M.R. Heat transfer and fluid flow in minichannels and microchannels. N.Y.: Elsevier, 2005. 473 p.

*Статья поступила в редакцию 15 ноября 2022 г.,
после доработки — 5 декабря 2022 г.,
принята к публикации 8 декабря 2022 г.,
после дополнительной доработки — 11 января 2023 г.*