

## ΜΕΛΕΤΗ ΤΩΝ ΠΑΡΑΜΕΤΡΩΝ ΛΕΙΤΟΥΡΓΙΑΣ ΜΙΚΡΟ-ΑΝΤΙΔΡΑΣΤΗΡΑ ΕΛΕΥΘΕΡΩΣ ΡΕΟΥΣΑΣ ΣΤΟΙΒΑΔΑΣ

Α.Δ. Αναστασίου, Α.Α. Μουζά

Εργαστήριο Τεχνολογίας Χημικών Εγκαταστάσεων, Τμήμα Χημικών Μηχανικών, ΑΠΘ

tel.: +30 2310 994161; email: mouza@auth.gr

### ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Η παρούσα εργασία αφορά τη μελέτη των χαρακτηριστικών της ελευθέρως ρέουσας υγρής στοιβάδας σε μικροκανάλια υπο κλίση. Συγκεκριμένα χρησιμοποιώντας σύστημα  $\mu$ -PIV μετρήθηκαν το πάχος της σχηματιζόμενης υγρής στοιβάδας, το σχήμα της διεπιφάνειας υγρού αερίου και η κατανομή της ταχύτητας σε τρία μικροκανάλια τετραγωνικής διατομής και πλάτους 1200, 600 και 300 $\mu$ m. Για να διερευνηθεί η επίδραση των φυσικών ιδιοτήτων της υγρής φάσης (ιξώδες και επιφανειακή τάση) χρησιμοποιήθηκαν νερό και υδατικά διαλύματα γλυκερίνης και βουτανόλης. Τέλος, διατυπώθηκαν συσχετισμοί οι οποίοι προβλέπουν με ικανοποιητική ακρίβεια το πάχος της υγρής στοιβάδας και την έκταση της διεπιφάνειας υγρού-αερίου και μπορούν να χρησιμοποιηθούν για το σχεδιασμό μικροσυσκευών ελευθέρως ρέουσας στοιβάδας.

### ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Η τεχνολογία των μικροσυσκευών είναι μια σύγχρονη και πολλά υποσχόμενη τάση στη Χημική Μηχανική με την οποία επιδιώκεται η μείωση του μεγέθους με στόχο τη μείωση του κόστους μέσω της αύξησης της απόδοσης. Χαρακτηριστικό των μικροσυσκευών είναι ότι στα κανάλια ροής τους η μία τουλάχιστον από τις διαστάσεις που είναι κάθετες στην κατεύθυνση της ροής είναι μικρότερη από 1mm με αποτέλεσμα ο λόγος επιφάνειας προς όγκο να είναι κατά μία έως δύο τάξεις μεγέθους μεγαλύτερος από εκείνο των αντίστοιχων συμβατικών συσκευών. Επίσης, δεδομένου ότι το χαρακτηριστικό μήκος είναι πολύ μικρό, η ροή είναι στρωτή (πολύ μικροί αριθμοί *Reynolds*) και κατά συνέπεια η μεταφορά θερμότητας και μάζας γίνεται με μοριακά μέσα (διάχυση).

Η πιο ευρέως χρησιμοποιούμενη συσκευή για συνεχή επαφή υγρής και αέριας φάσης είναι οι μικροαντιδραστήρες ελευθέρως ρέουσας στοιβάδας (*Falling Film Microreactors, FFMR*)<sup>[1]</sup>. Στα μικροκανάλια οι υγρές στοιβάδες που σχηματίζονται είναι αρκετά σταθερές και έχουν τυπικό πάχος μικρότερο από 100 $\mu$ m, όταν στις συμβατικές συσκευές το πάχος της στοιβάδας κυμαίνεται μεταξύ 0.5 και 3mm<sup>[2]</sup>. Επειδή οι λεπτές αυτές στοιβάδες εξασφαλίζουν μεγάλους λόγους επιφάνειας προς όγκο ευνοούν τη μεταφορά θερμότητας και μάζας γεγονός που τις καθιστά κατάλληλες για διάφορες διεργασίες υγρού-αερίου (π.χ. διεργασίες αντίδρασης, εξάτμιση και γενικά έντονα εξώθερμα ή ενδόθερμα φαινόμενα).

Για να επιτευχθεί η βέλτιστη απόδοση των μικροαντιδραστήρων, ο σχεδιαστής μηχανικός πρέπει να γνωρίζει με ακρίβεια τον τρόπο με τον οποίο η παροχή και οι ιδιότητες της υγρής φάσης επηρεάζουν τη λειτουργία τους. Λόγω των μικρών διαστάσεων στη μικροκλίμακα κυριαρχούν οι δυνάμεις ιξώδους, ενώ οι δυνάμεις αδράνειας καθίστανται λιγότερο σημαντικές. Ταυτόχρονα ο λόγος του εμβαδού της επιφάνειας προς τον όγκο του συστήματος γίνεται μεγαλύτερος και έτσι ο ρόλος των επιφανειακών δυνάμεων είναι σημαντικός. Είναι λοιπόν αναμενόμενο λοιπόν οι σχεδιαστικές σχέσεις που ισχύουν στη μακροκλίμακα να μην μπορούν να

προβλέψουν ικανοποιητικά τα φαινόμενα στη μικροκλίμακα. Ως αποτέλεσμα οι παράμετροι λειτουργίας ενός *FFMR* (δηλαδή πάχος υγρής στοιβάδας, ταχύτητα υγρού, έκταση διεπιφάνειας) δεν αναμένεται να μπορούν να προβλεφθούν ικανοποιητικά χρησιμοποιώντας τις καθιερωμένες συσχετίσεις σχεδιασμού που ισχύουν στη μακροκλίμακα.

Από τη βιβλιογραφική ανασκόπηση προέκυψε ότι λίγες μόνο εργασίες ασχολούνται με τους παράγοντες που επηρεάζουν τη λειτουργία των μικροσυσκευών αυτού του τύπου. Συγκεκριμένα στην εργασία των Zhang et al.<sup>[3]</sup> διερευνώνται οι παράγοντες που επηρεάζουν τη σταθερότητα της ελευθέρως ρέουσας στοιβάδας, παρουσιάζονται οι περιοχές ροής σε έναν *FFMR*, και προτείνεται μία εμπειρική συσχέτιση για τον υπολογισμό του ελάχιστου ρυθμού ροής για να επιτευχθεί πλήρης διαβροχή του μικροκαναλιού. Οι Al-Rawashdeh et al.<sup>[4]</sup> εξέτασαν την επίδραση της παροχής της υγρής φάσης, του ύψους του θαλάμου που ρέει η αέρια φάση καθώς και του υδροφίλου-υδρόφοβου χαρακτήρα του υλικού κατασκευής του μικροαντιδραστήρα, στο ρυθμό απορρόφησης του CO<sub>2</sub> σε υδατικό διάλυμα NaOH. Οι Yeong et al.<sup>[5]</sup> φαίνεται να είναι οι πρώτοι οι οποίοι, έχουν μελετήσει πειραματικά (χρησιμοποιώντας ένα *confocal* μικροσκόπιο) το σχήμα της διεπιφάνειας υγρού αερίου καθώς και το πάχος της υγρής στοιβάδας χρησιμοποιώντας στα πειράματά τους ως υγρή φάση αλκοόλες χαμηλής επιφανειακής τάσης. Σε μια πιο πρόσφατη εργασία οι Tourneille et al.<sup>[6]</sup> μελέτησαν την λειτουργία ενός *FFMR* μεταβάλλοντας τις ιδιότητες της υγρής φάσης, όπως το ιξώδες και η επιφανειακή τάση. Πρόσφατα οι Ho et al.<sup>[2]</sup>, έκαναν αριθμητική προσομοίωση της ροής χρησιμοποιώντας το μοντέλο *VOF* και μελέτησαν τα υδροδυναμικά χαρακτηριστικά του υγρού φιλμ (δηλαδή κατανομή ταχύτητας, πτώση πίεσης και ρυθμός διάτμησης) καθώς και το σχήμα της διεπιφάνειας σε ένα μικροκανάλι πλάτους 300μm.

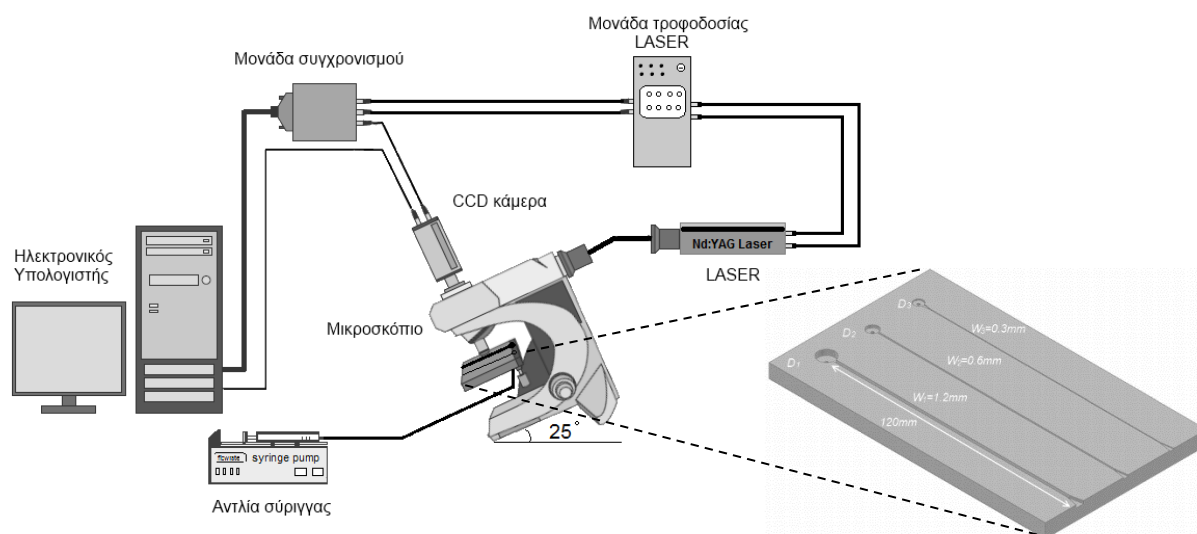
Σε καμία από τις παραπάνω εργασίες όμως δεν προτείνονται σχέσεις που να μπορούν να προβλέψουν τα λειτουργικά χαρακτηριστικά ενός *FFMR*. Η εργασία αυτή είναι μέρος διδακτορικής διατριβής που έχει ως στόχο την πειραματική και υπολογιστική μελέτη της επίδρασης διάφορων παραμέτρων της υγρής φάσης (π.χ. φυσικές ιδιότητες, ογκομετρική παροχή) καθώς και των γεωμετρικών χαρακτηριστικών του αγωγού στο σχήμα της διεπιφάνειας υγρού-αερίου καθώς και στην κατανομή της ταχύτητας του υγρού. Δεδομένου ότι οι συσχετίσεις που ισχύουν στην μακροκλίμακα δεν είναι γενικά κατάλληλες για να εφαρμοστούν στις μικροκλίμακα, σκοπός της παρούσας εργασίας είναι να προταθούν συσχετισμοί για την πρόβλεψη των γεωμετρικών χαρακτηριστικών (δηλαδή πάχος υγρής στοιβάδας, σχήμα της διεπιφάνειας υγρού-αερίου) της υγρής φάσης.

## ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΗ ΔΙΑΔΙΚΑΣΙΑ

Η πειραματική διάταξη (Σχ. 1) αποτελείται από το δοκίμιο με τα μικροκανάλια ( $D1=1200\mu\text{m}$ ,  $D2=600\mu\text{m}$ ,  $D3=300\mu\text{m}$ ), σύστημα  $\mu$ -*PIV* φθορισμού και αντλία σύριγγας για την διακίνηση και τον έλεγχο της ογκομετρικής παροχής της υγρής φάσης. Τα μικροκανάλια έχουν κατασκευαστεί σε πλάκα διαφανούς θερμοπλαστικού υλικού (*PMMA*), χρησιμοποιώντας υψηλής ακρίβειας τεχνικές χάραξης (*micromilling*). Περισσότερες λεπτομέρειες βρίσκονται σε προηγούμενη εργασία<sup>[7]</sup>. Ως φωτεινή πηγή για το σύστημα  $\mu$ -*PIV* χρησιμοποιείται λέιζερ Nd:YAG διπλής κοιλότητας το οποίο εκπέμπει στα 532nm. Η ροή καταγράφεται χρησιμοποιώντας υψηλής ευαισθησίας κάμερα CCD (*MkII Hisense* της *DantecDynamics*), προσαρμοσμένη σε μικροσκόπιο *Nikon (Eclipse LV150)* ενώ μια συσκευή συγχρονισμού χρησιμοποιείται για να συγχρονίσει την φωτεινή πηγή με το κλείστρο της κάμερας. Για την πραγματοποίηση των μετρήσεων η ροή ιχνηθετείται προσθέτοντας φθορίζοντα σωματίδια πολυστυρενίου (*Invitrogen*) μέσης διαμέτρου 1μm. Για να ληφθούν επαρκώς μεγεθυμένες εικόνες χρησιμοποιείται φακός

20X με  $NA=0,20$  και βάθος πεδίου  $3\mu\text{m}$ . Η χρονική καθυστέρηση μεταξύ δύο στιγμιότυπων είναι από  $150\text{-}1500\mu\text{s}$  ανάλογα με την ογκομετρική παροχή που μελετάται, ενώ η συχνότητα δειγματοληψίας είναι  $11\text{Hz}$ . Για την επεξεργασία των εικόνων και την εξαγωγή των αποτελεσμάτων χρησιμοποιείται το λογισμικό *Flowmanager* (*Dantec Dynamics*<sup>®</sup>). Ως υγρή φάση χρησιμοποιήθηκαν απεσταγμένο νερό, υδατικά διαλύματα γλυκερόλης και υδατικά διαλύματα βουτανόλης, οι φυσικές ιδιότητες των οποίων παρουσιάζονται στον **Πίνακα 1**. Όλα τα πειράματα έγιναν σε ελεγχόμενη θερμοκρασία περιβάλλοντος  $25\pm 0.5\text{ }^\circ\text{C}$ .

Για τη μελέτη των περιοχών ροής χρησιμοποιήθηκε κάμερα ταχείας λήψης (*Redlake Motion Scope PCI*<sup>®</sup> *1000S*), ενώ για την ιχνηθέτηση της ροής προστέθηκε στην υγρή φάση διάλυμα  $0,12\%$  w/w χρωστικής *Nigrosin*.



**Σχήμα 1:** Η πειραματική διάταξη.

**Πίνακας 1:** Διαλύματα που χρησιμοποιήθηκαν για τα πειράματα και φυσικές ιδιότητες.

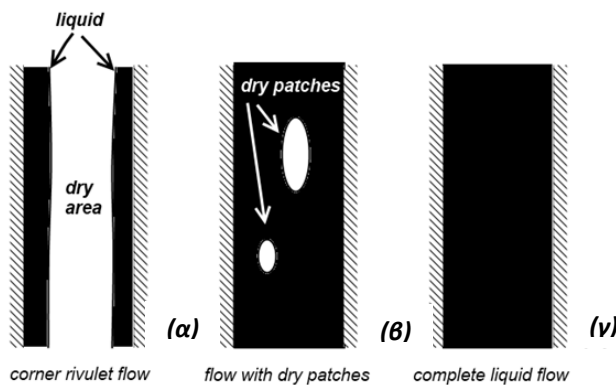
a/a	Σύσταση (v/v)	Ιξώδες (mPa s)	Διεπιφ. τάση (mN/m)	Ποκνότητα (kg/m <sup>3</sup> )
b1	5% βουτανόλη	1.03	45.0	998
b2	2% βουτανόλη	1.02	52.8	998
g1	30% γλυκερίνη	2.45	67.8	1070
g2	20% γλυκερίνη	1.50	66.7	1030
w	νερό	1.01	72.1	998

Η πειραματική συσκευή τοποθετήθηκε σε γωνία κλίσης  $25$  μοιρών από το οριζόντιο επίπεδο. Για συμβατικές συσκευές ελευθέρως ρέουσας στοιβάδας σύμφωνα με τους Pierson & Whitaker,<sup>[8]</sup> το μήκος εισόδου, δηλαδή η απόσταση από την είσοδο που απαιτείται για την επίτευξη πλήρως ανεπτυγμένης ροής και την απόσβεση των φαινομένων εισόδου, εξαρτάται από τον τρόπο με τον οποίο σχηματίζεται η υγρή στοιβάδα. Επειδή για την περίπτωση των *FFMR* δεν υπάρχουν στοιχεία έγιναν μετρήσεις των χαρακτηριστικών της υγρής στοιβάδας σε διάφορες αποστάσεις από την είσοδο και για διάφορες παροχές της υγρής φάσης. Βρέθηκε ότι για όλες τις περιπτώσεις η ροή καθίσταται πλήρως αναπτυγμένη σε απόσταση μικρότερη από  $10$  διαμέτρους από την είσοδο του υγρού. Έτσι όλες οι μετρήσεις πραγματοποιήθηκαν σε

απόσταση 40mm από την είσοδο των μικροκαναλιών, απόσταση που εξασφαλίζει ότι τα φαινόμενα εισόδου δεν επηρεάζουν τα πειραματικά αποτελέσματα.

## ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ

Κατά τη λειτουργία ενός *FFMR* είναι σημαντικό να γνωρίζουμε τα διάφορα πρότυπα ροής καθώς και την ελάχιστη ογκομετρική παροχή στην οποία η επιφάνεια του μικροκαναλιού διαβρέχεται πλήρως από το υγρό. Όπως είναι αναμενόμενο και αναφέρεται επίσης από τους Zhang et al.<sup>[3]</sup>, τα πρότυπα ροής στην μικροκλίμακα (Σχ. 2) διαφέρουν από αυτά της μακροκλίμακας. Για την περίπτωση των υδρόφιλων επιφανειών σε πολύ χαμηλές ογκομετρικές παροχές το υγρό συγκεντρώνεται στις πλευρές των μικροκαναλιών και έτσι σχηματίζονται δύο λωρίδες υγρού κοντά στα τοιχώματα και μία στεγνή περιοχή στο μέσον του μικροκαναλιού (*corner rivulet flow*, Σχ. 2α). Με την αύξηση του ρυθμού ροής το υγρό αρχίζει να καλύπτει μεγαλύτερο μέρος, ενώ παραμένουν κάποιες στεγνές κηλίδες σε διάφορα σημεία κατά μήκος του καναλιού (*film flow with dry patches*, Σχ. 2β). Ο σχηματισμός μιας τέτοιας στεγνής κηλίδας είναι το αποτέλεσμα του φαινομένου υστέρησης της γωνία επαφής, το οποίο επηρεάζει την διαβροχή μιας στεγνής επιφάνειας. Τοπικά η γωνία επαφής μπορεί να είναι υψηλότερη



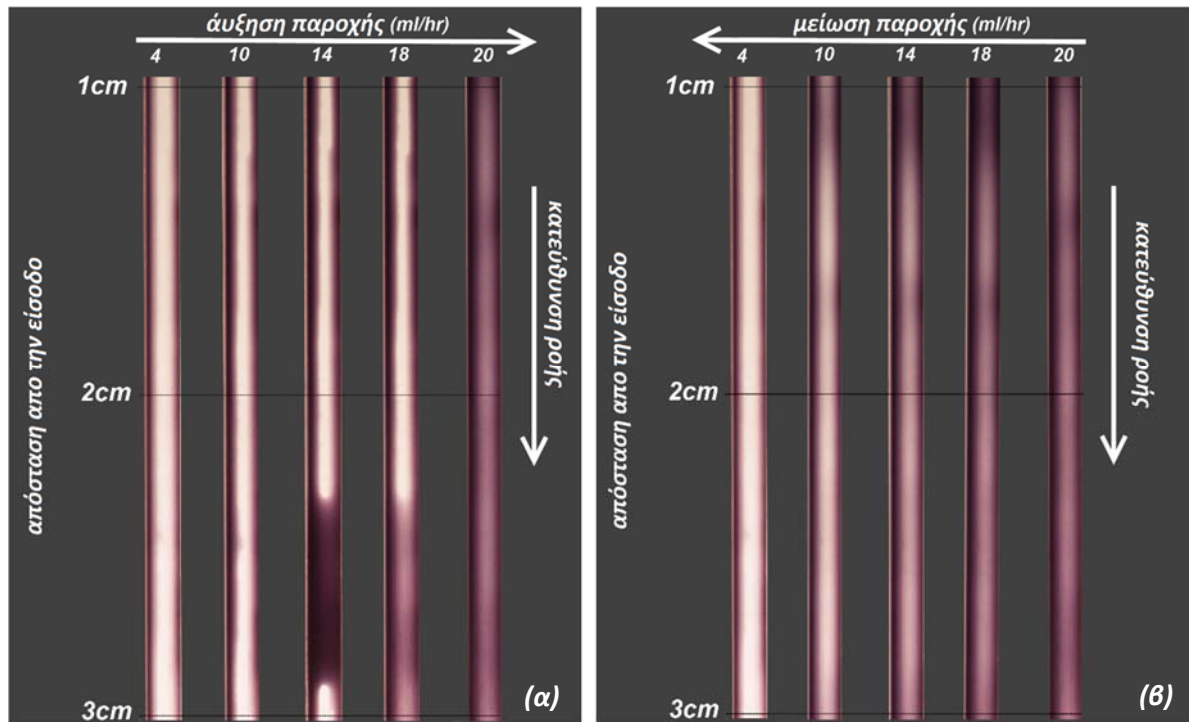
Σχήμα 2: Πρότυπα ροής ελευθέρως ρέουσας στοιβάδας σε μικροαγωγούς.

λόγω της τοπολογίας (τραχύτητα και ακαθαρσίες) και της ετερογένειας της επιφάνειας<sup>[9]</sup> και συνεπώς απαιτείται υψηλότερη ενέργεια προκειμένου να επιτευχθεί η διαβροχή. Όταν ο ρυθμός ροής αυξάνεται η υδροδυναμική ενέργεια του υγρού γίνεται μεγαλύτερη, οπότε επιτυγχάνεται η πλήρης κάλυψη της επιφάνειας από την υγρή στοιβάδα (*complete film flow*). Σε κάθε περίπτωση υπάρχει μια ελάχιστη παροχή υγρού για την οποία επιτυγχάνεται η πλήρης διαβροχή (Σχ. 2γ). Προφανώς, η επιθυμητή κατάσταση για να πραγματοποιηθεί μια

διεργασία αέριας-υγρής φάσης είναι ολόκληρο το κανάλι να καλύπτεται από το υγρό, το οποίο περιορίζεται μεταξύ της διεπιφάνειας υγρού-αερίου (μηνίσκος του υγρού) και το κάτω τοίχωμα του μικροκαναλιού<sup>[10]</sup>.

Τα πειράματα διερεύνησης των προτύπων ροής διεξάγονται αρχικά με βαθμιαία αύξηση της παροχής. Με βάση τις εικόνες που καταγράφονται από την *CCD* κάμερα ταχέως λήψης παρατηρήθηκαν και τα τρία βασικά πρότυπα ροής. Στο Σχ. 3 παρουσιάζονται τα αποτελέσματα για το μικροκανάλι πλάτους 1200μm για διάφορες παροχές του υγρού. Είναι προφανές ότι για χαμηλές παροχές το υγρό ρέει στα άκρα του καναλιού (*corner rivulet flow*). Καθώς ο ρυθμός ροής αυξάνεται, το πρότυπο ροής παραμένει αμετάβλητο μέχρι τα 14ml/hr όπου υπάρχει μετάβαση σε ροή με στεγνές κηλίδες (*film flow with dry patches*). Οι τελευταίες στεγνές κηλίδες εξαφανίζονται για παροχή 20ml/hr, παροχή για την οποία εξασφαλίζεται η πλήρης διαβροχή της επιφάνειας του καναλιού και θεωρείται η ελάχιστη παροχή διαβροχής (*Minimum Wetting Flowrate, MWF*). Αν από το σημείο αυτό ελαττωθεί σταδιακά η παροχή βρίσκεται ότι η *MWF* μειώνεται από τα 20 στα 11ml/hr, είναι δηλαδή σχεδόν η μισή από αυτή που βρέθηκε αυξάνοντας την παροχή. Στο κανάλι με πλάτος 600μm η μετάβαση γίνεται χωρίς να εμφανίζονται οι στεγνές κηλίδες. Με μείωση της παροχής παρατηρήθηκε η δημιουργία ενός σταθερού υγρού φιλμ ακόμη και για πολύ χαμηλές τιμές της παροχής (0.2ml/hr). Η διαφορά που παρατηρείται ανάμεσα στην αύξηση και τη μείωση της παροχής του υγρού έχει επίσης επι-

σημανθεί από τους Hartley και Murgatroyd,<sup>[11]</sup> οι οποίοι ερεύνησαν τα κριτήρια αποκόλλησης της υγρής στοιβάδας στη μακροκλίμακα. Επίσης αξίζει να σημειωθεί ότι για το στενότερο από τα μικροκανάλια (300μm) η επιφάνεια του καναλιού καλύπτεται πλήρως από το υγρό ακόμη και για πολύ χαμηλές παροχές.

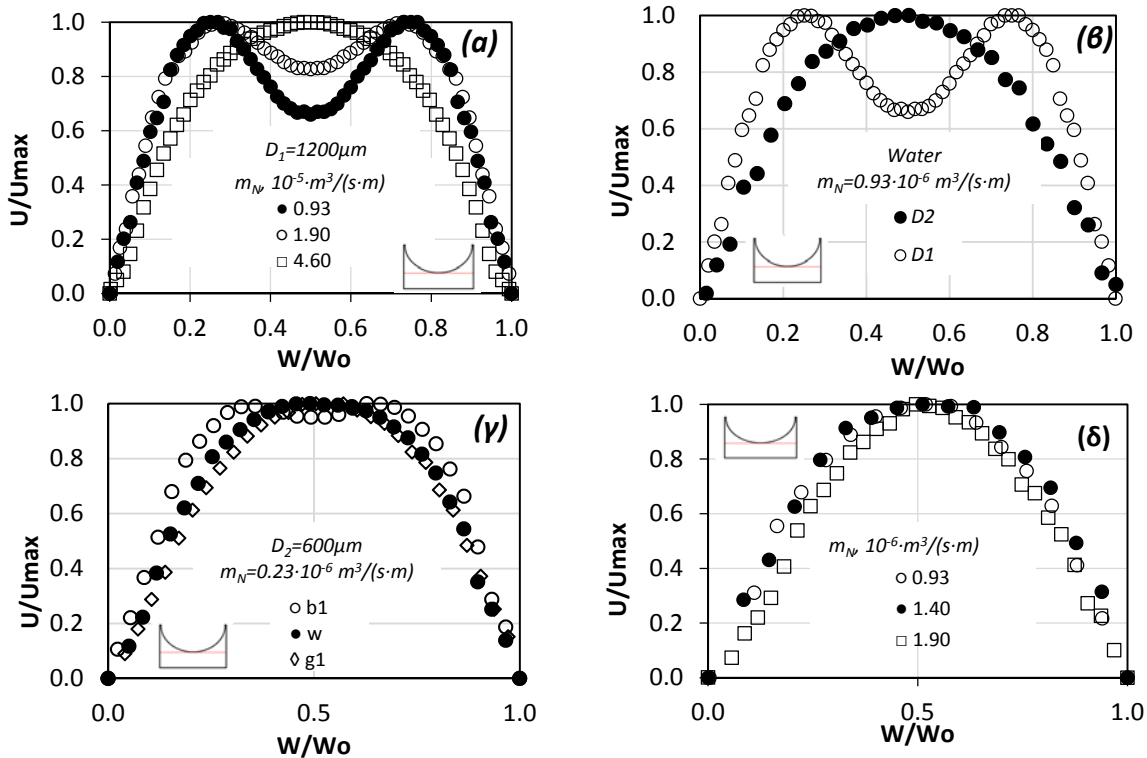


**Σχήμα 3:** Πρότυπα ροής στο μικροκανάλι πλάτους 1200μm; α) αυξάνοντας και β) μειώνοντας την παροχή του υγρού.

Χρησιμοποιώντας το  $\mu$ -PIV μετρήθηκε η τοπική ταχύτητα για διάφορες παροχές υγρού στα τρία κανάλια και για όλα τα υγρά που μελετήθηκαν. Στο **Σχ. 4** παρουσιάζονται τυπικές κατανομές ταχύτητας στα τρία μικροκανάλια για διάφορα υγρά και παροχές. Η απόσταση από το τοίχωμα είναι διαιρεμένη με το ολικό πλάτος του καναλιού ενώ η ταχύτητα διαιρείται με τη μέγιστη για κάθε περίπτωση τιμή της. Όπως φαίνεται στο κανάλι των 1200μm για τις χαμηλές παροχές του υγρού, η κατανομή της ταχύτητας δεν ακολουθεί τη συνήθη παραβολική κατανομή αλλά μια κατανομή σχήματος “M” αφού παρατηρούνται δύο μέγιστες τιμές, σε συμμετρικά ως προς τον άξονα του καναλιού σημεία. Με αύξηση της παροχής τα δύο μέγιστα βαθμιαία ενώνονται μεταξύ τους και η κατανομή της ταχύτητας γίνεται παραβολική. Αντίστοιχες παρατηρήσεις αναφέρονται στις εργασίες του Ho et al.<sup>[2]</sup> και Al-Rawashdeh et al.<sup>[10]</sup> χωρίς όμως να σχολιάζεται και να ερμηνεύεται επαρκώς το φαινόμενο. Στο **Σχ. 4β** παρουσιάζονται οι κατανομές της ταχύτητας στη βάση του μηνίσκου για δύο μικροκανάλια ( $D1=1200\mu\text{m}$  και  $D2=600\mu\text{m}$ ) για το ίδιο ρευστό και για μία ανηγμένη παροχή υγρού ( $m_N=Q/W_0$ ). Ενώ για το πλατύτερο μικροκανάλι  $D1$  η ταχύτητα ακολουθεί μια κατανομή σχήματος “M”, στο στενότερο  $D2$  μικροκανάλι η κατανομή είναι παραβολική. Από αυτό συνάγεται ότι η επίδραση των πλευρικών τοιχωμάτων είναι ένας σημαντικός παράγοντας που επηρεάζει την κατανομή της ταχύτητας. Τέλος, στο **Σχ. 4γ** παρουσιάζεται η επίδραση των φυσικών ιδιοτήτων της υγρής φάσης, για τρία υγρά, δηλαδή νερό (υγρό αναφοράς), γλυκερόλη 30% (υψηλότερο ιξώδες) και 5% βουτανόλη (χαμηλότερη επιφανειακή τάση), για την ίδια ανηγμένη παροχή και το ίδιο πλάτος μικροκαναλιού. Είναι σαφές ότι το διάλυμα με την μικρότερη επιφανειακή τάση (βουτανόλη), το οποίο σχηματίζει και την λεπτότερη υγρή στοιβάδα, παρουσιάζει κατανομή ταχύ-

τητας σχήματος “M” σε αντίθεση με τα άλλα δύο υγρά όπου η κατανομή είναι παραβολική. Τέλος, στο Σχ. 4δ παρουσιάζονται οι κατανομές ταχύτητας που μετρήθηκαν για το στενότερο μικροκανάλι ( $D3=300\mu\text{m}$ ). Στην περίπτωση αυτή, η κατανομή της ταχύτητας παραμένει παραβολική ακόμη και στις χαμηλές παροχές και για όλα τα υγρά που χρησιμοποιούνται.

Τα παραπάνω ευρήματα είναι σύμφωνα με τα θεωρητικά αποτελέσματα που δημοσιεύονται από τους Scholle & Aksel<sup>[12]</sup>, οι οποίοι αναφέρουν ότι, αν το ύψος του μηνίσκου ( $H_o$ ) είναι πολύ μικρότερο από το πάχος της υγρής στοιβάδας ( $H$ ) (Σχ. 5δ), τότε η ταχύτητα μπορεί να αντιμετωπίζεται όπως σε μια ροή με επίπεδη διεπιφάνεια. Αν όμως το ύψος του μηνίσκου είναι της ίδιας τάξης μεγέθους με το πάχος της υγρής στοιβάδας, η ταχύτητα φθάνει τη μέγιστη τιμή της κοντά στα πλευρικά τοιχώματα και όχι στο μέσον του καναλιού. Λαμβάνοντας υπόψη όλα αυτά πιθανολογείται ότι η κατανομή σχήματος “M” εμφανίζεται λόγω των γεωμετρικών χαρακτηριστικών της υγρής φάσης (πάχος υγρής στοιβάδας και ύψος του μηνίσκου). Πράγματι συνδυάζοντας τα ευρήματα για την ταχύτητα με αυτά για τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά της υγρής φάσης βρέθηκε πως η “M” κατανομή εμφανίζεται όταν ο λόγος του ύψους του μηνίσκου προς το πάχος της στοιβάδας είναι μεγαλύτερος από την μονάδα.



Σχήμα 4: Κατανομές ταχύτητας στη βάση του μηνίσκου. Επίδραση: α) της παροχής του υγρού για  $D1=1200\mu\text{m}$ ), β) του πλάτους καναλιού, γ) των φυσικών ιδιοτήτων, δ) της παροχής για  $D3= 300\mu\text{m}$ .

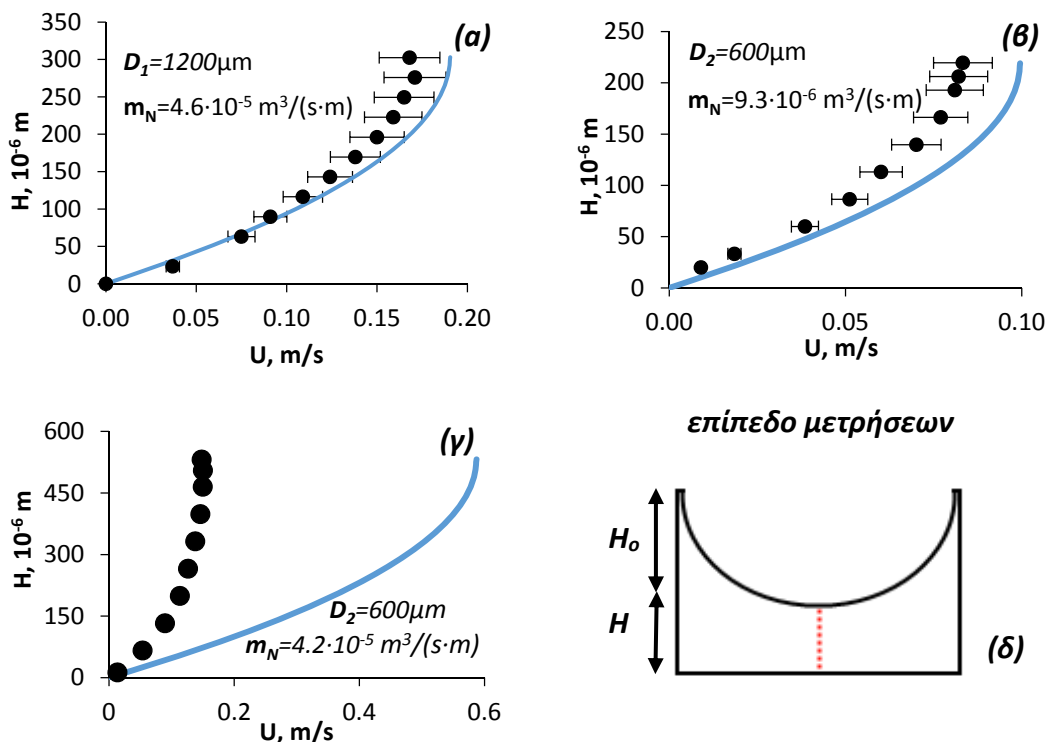
Μετρώντας σε διάφορα επίπεδα και συνδυάζοντας τα δεδομένα μπορεί να ανακατασκευαστεί η κατανομή της ταχύτητας στην κάθετη προς τη ροή διεύθυνση. Σύμφωνα με την θεωρία του Nusselt που εφαρμόζεται στην μακροκλίμακα, η κατανομή αυτή δίνεται από μια συνάρτηση (Εξ. 1) η οποία περιλαμβάνει το πάχος της υγρής στοιβάδας, τις φυσικές ιδιότητες της υγρής φάσης (πυκνότητα και ιξώδες) καθώς και την επίδραση της βαρύτητας<sup>[13]</sup>.

$$U = \frac{g\rho}{2\mu} (2my - y^2)$$

1

Στο **Σχ. 5**, συγκρίνονται οι κατανομές ταχύτητας που προκύπτουν από τις μετρήσεις με αυτές που υπολογίζονται από την **Εξ. 1**. Είναι σαφές ότι κοντά στην ελεύθερη επιφάνεια υπάρχει μεγάλη απόκλιση για όλες τις περιπτώσεις που μελετήθηκαν. Όπως είναι αναμενόμενο, η απόκλιση από τα πειραματικά δεδομένα αυξάνεται καθώς μειώνεται το πλάτος των μικροκαναλιών (**Σχ. 5α** και **5β**) και καθώς αυξάνεται η ταχύτητα ροής (**Σχ. 5β** και **5γ**). Αυτό μπορεί να εξηγηθεί από το γεγονός ότι η εξίσωση του *Nusselt* δεν περιλαμβάνει ούτε την επίδραση των τοιχωμάτων ούτε την επίδραση των δυνάμεων επιφανειακής τάσης που ενεργούν στην διεπιφάνεια.

Λόγω του υδρόφιλου χαρακτήρα του μικροκαναλιού (γωνία επαφής  $62^\circ$ ) και του γεγονότος ότι στη μικροκλίμακα οι τριχοειδείς δυνάμεις παίζουν σημαντικό ρόλο, η διεπιφάνεια έχει το σχήμα μηνίσκου, τα δύο πιο σημαντικά γεωμετρικά χαρακτηριστικά του οποίου είναι το ύψος του ( $H_o$ ) και το πάχος της υγρής στοιβάδας που βρίσκεται κάτω από αυτόν ( $H$ ) (**Σχ. 5δ**).



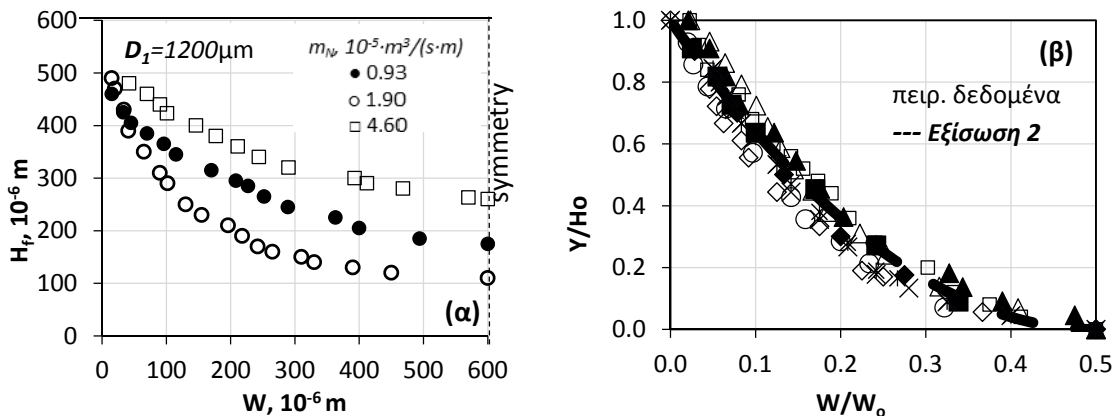
**Σχήμα 5:** Κατανομές ταχύτητας στην κάθετη προς τη ροή διεύθυνση και σύγκριση τους με τη σχέση του *Nusselt* (αποκλίσεις  $\pm 10\%$ ).

Τα δύο αυτά μεγέθη μπορούν να προσδιορισθούν πειραματικά με την χρήση του  $\mu$ -*PIV* μετρώντας σε διαδοχικά επίπεδα καθ' όλο το ύψος της υγρής στοιβάδας<sup>[7]</sup> ενώ με το συνδυασμό των δεδομένων σε κάθε επίπεδο μπορεί να γίνει ανακατασκευή της διεπιφάνειας. Από το **Σχ. 6α**, όπου παρουσιάζεται η διεπιφάνεια για το μικροκανάλι  $DI=1200\mu\text{m}$  και για διάφορες τιμές της ανηγμένης παροχής, φαίνεται ότι για τη χαμηλότερη παροχή ο μηνίσκος έχει τη μέγιστη καμπυλότητα και συνεπώς τη μέγιστη έκταση διεπιφάνειας. Καθώς αυξάνεται η παροχή της υγρής φάσης το ύψος μηνίσκου και η καμπυλότητά του μειώνονται και κατά συνέπεια ελαττώνεται και η έκταση της διαθέσιμης διεπιφάνειας. Αν το ύψος  $Y$  διαιρεθεί με το ολικό ύψος  $H_o$  και το πλάτος  $W$  με το ολικό πλάτος του αντίστοιχου καναλιού  $W_o$  τότε προκύπτει η αδιάστατη μορφή της διεπιφάνειας. Στο **Σχ. 6β** παρουσιάζονται οι καμπύλες που προέκυψαν για όλες τις περιπτώσεις που εξετάστηκαν και παρατηρείται ότι όλες ταυτίζονται μεταξύ τους. Έτσι βρέθηκε ότι το σχήμα του μηνίσκου μπορεί να περιγραφθεί από ένα πολώνυμο  $2^{00}$

βαθμού (Εξ. 2). Οι συντελεστές της Εξ. 2 υπολογίζονται με βάση τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του καναλιού και το ύψος του μηνίσκου. Χρησιμοποιώντας τη σχέση αυτή μπορεί να εκτιμηθεί γρήγορα και συγχρόνως με σχετική ακρίβεια η έκταση της διεπιφάνειας σε συσκευές FFMR.

$$Y/(H_f - H) = C + A(W/W_o) + B(W/W_o)^2 \quad 2$$

Όπου  $C=H_f-H$ ,  $B=4(H_f-H)/W_o^2$  και  $A=-BW_o$ , όπου  $H_f=H+H_o$



Σχήμα 6: α) Ανακατασκευή της διεπιφάνειας; β) Αδιαστατοποίηση του σχήματος της διεπιφάνειας για όλες τις περιπτώσεις που μελετήθηκαν.

Για τον σχεδιασμό συσκευών ελευθέρως ρέουσας στοιβάδας είναι πολύ σημαντικό να μπορεί να προβλεφθεί το πάχος  $H$  της υγρής στοιβάδας. Όπως αποδείχθηκε σε προηγούμενη εργασία<sup>[7]</sup> οι σχέσεις της μακροκλίμακας έχουν μεγάλη απόκλιση από τα πειραματικά δεδομένα και έτσι δημιουργείται η ανάγκη για την διατύπωση νέων συσχετισμών. Αρχικά μετρήθηκε το πάχος της υγρής στοιβάδας για διάφορες περιπτώσεις υγρών (Σχ. 7α, 7β, 7γ). Όπως φαίνεται το πάχος της στοιβάδας επηρεάζεται τόσο από τις ιδιότητες της υγρής φάσης (Σχ. 7α & 7β) όσο και από το πλάτος του μικροκαναλιού (Σχ. 7γ). Χρησιμοποιώντας διαστατική ανάλυση βρέθηκε ότι το πάχος ( $H$ ) μπορεί να υπολογισθεί ως συνάρτηση των αριθμών *Reynolds*, *Capillary*, και *Froude* (Εξ. 3). Κατά τον υπολογισμό των αδιάστατων αριθμών ως ταχύτητα χρησιμοποιείται η ογκομετρική παροχή διαιρεμένη με τη συνολική διατομή του καναλιού ( $Q/W_o h$ , όπου  $h$  το ύψος του καναλιού) ενώ χαρακτηριστικό μήκος θεωρείται το πλάτος ( $W_o$ ) του καναλιού.

$$H/W_o = C \cdot (Re^a Ca^b Fr^d)^f \quad 3$$

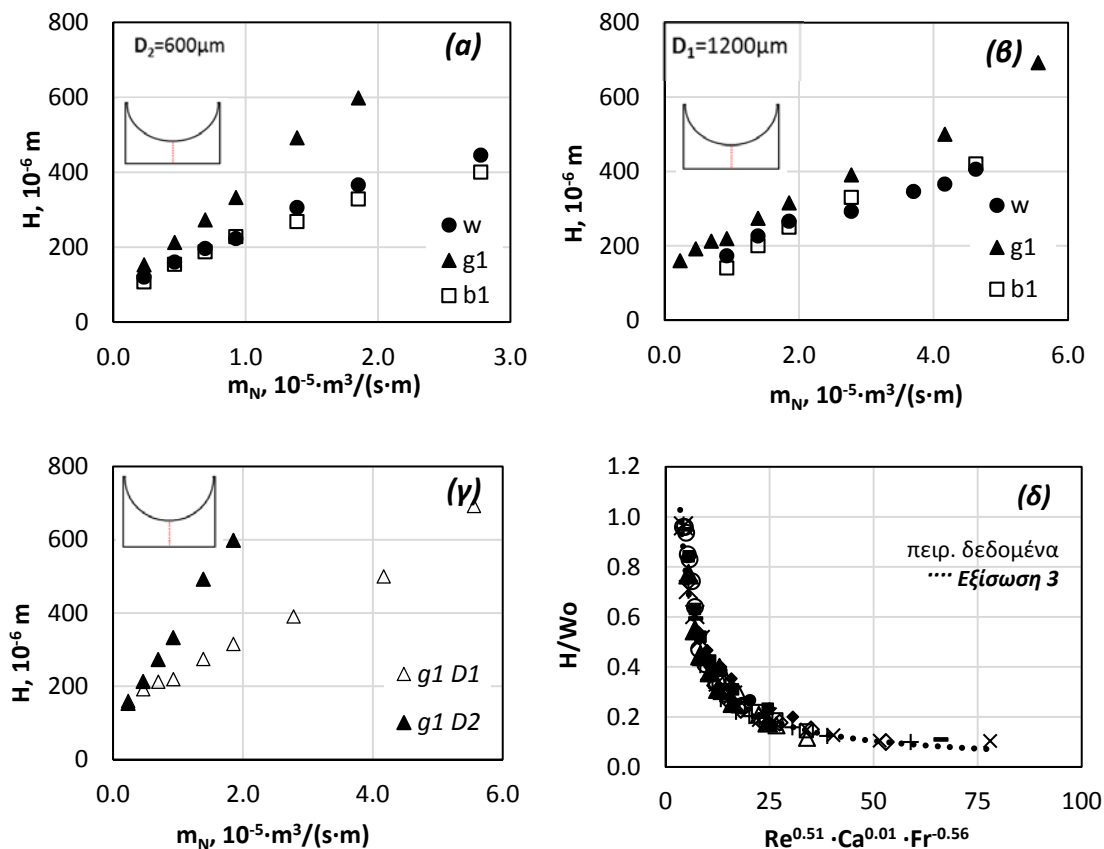
$$Re = Q \cdot \rho / (\mu \cdot h), \quad Ca = \mu Q / (W_o h \sigma), \quad Fr = Q^2 / (g \rho \cdot W_o^3 \cdot h^2)$$

Οι συντελεστές της εξίσωσης που υπολογίσθηκαν με προσαρμογή στα πειραματικά δεδομένα δίνονται στον Πίνακα 2. Η Εξ. 3 μπορεί να προβλέψει το πάχος της υγρής στοιβάδας με ακρίβεια  $\pm 20\%$  (Σχ. 7δ).

Πίνακας 2: Παράμετροι της εξίσωσης 3 όπως υπολογίσθηκαν με βάση τα πειραματικά δεδομένα.

$a$	$b$	$c$	$d$	$f$
0.51	0.01	3.02	-0.56	-0.86





**Σχήμα 7:** Μέτρηση του πάχους της υγρής στοιβάδας. α) Επίδραση φυσικών ιδιοτήτων για πλάτος 600 $\mu\text{m}$ ; β) Επίδραση φυσικών ιδιοτήτων για πλάτος 1200 $\mu\text{m}$ ; γ) Επίδραση πλάτος μικροκαναλιού; δ) Σύγκριση πειραματικών δεδομένων με *Εξ. 3*.

## ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ

Η μελέτη έδειξε ότι:

- Τα φαινόμενα διαβροχής παίζουν σημαντικό ρόλο στη λειτουργία ενός *FFMR*.
- Η κατανομή της ταχύτητας δεν μπορεί να προβλεφθεί από σχέσεις που ισχύουν στη μακροκλίμακα ενώ φαίνεται να εξαρτάται από το πλάτος του καναλιού.
- Τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά (πάχος και σχήμα) της υγρής στοιβάδας εξαρτώνται τόσο από τις φυσικές ιδιότητες της υγρής φάσης όσο και από το πλάτος του καναλιού.
- Το σχήμα της διεπιφάνειας αποδείχθηκε ότι μπορεί να περιγραφεί με σχετική ακρίβεια από ένα πολώνυμο δευτέρου βαθμού αν είναι γνωστά τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του καναλιού καθώς και το πάχος της υγρής στοιβάδας.
- Προτείνεται σχέση πρόβλεψης του πάχους της υγρής στοιβάδας με δεδομένα τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του καναλιού, τις φυσικοχημικές ιδιότητες της υγρής φάσης καθώς και την παροχή του υγρού.

Οι συσχετισμοί που προτείνονται αποτελούν ένα χρήσιμο εργαλείο για τον προκαταρκτικό σχεδιασμό μιας συσκευής ελευθέρως ρέουσας στοιβάδας στην μικροκλίμακα. Για την περαιτέρω αξιολόγηση των συσχετισμών απαιτείται η διεξαγωγή πειραμάτων και για άλλες περιπτώσεις (π.χ. διαφορετικό υλικό κατασκευής, άλλη γωνία κλίσης κλπ).

**Ευχαριστίες:** Οι συγγραφείς θα ήθελαν να ευχαριστήσουν τους Καθηγητές Σ.Β. Παρά (ΑΠΘ), και Α. Gavriilidis (UCL, UK) για τις πολύτιμες συμβουλές τους και τα εποικοδομητικά τους σχόλια, καθώς και τον Τεχνικό του Εργαστηρίου μας κ. Σ. Λέκκα για την τεχνική υποστήριξη.

## ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ

- [1] D. Ziegenbalg, P. Löb, M.m. Al-Rawashdeh, D. Kralisch, V. Hessel, F. Schönfeld, Use of 'smart interfaces' to improve the liquid-sided mass transport in a falling film microreactor, *Chemical Engineering Science*, **65** (2010) 3557-3566.
- [2] C.-D. Ho, H. Chang, H.-J. Chen, C.-L. Chang, H.-H. Li, Y.-Y. Chang, CFD simulation of the two-phase flow for a falling film microreactor, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **54** (2011) 3740-3748.
- [3] H. Zhang, J. Yue, G. Chen, Q. Yuan, Flow pattern and break-up of liquid film in single-channel falling film microreactors, *Chemical Engineering Journal*, **163** (2010) 126-132.
- [4] M.m. Al-Rawashdeh, V. Hessel, P. Lob, K. Mevissen, F. Schonfeld, Pseudo 3-D simulation of a falling film microreactor based on realistic channel and film profiles, *Chemical Engineering Science*, **63** (2008) 5149-5159.
- [5] K.K. Yeong, A. Gavriilidis, R. Zapf, H.J. Kost, V. Hessel, A. Boyde, Characterisation of liquid film in a microstructured falling film reactor using laser scanning confocal microscopy, *Experimental Thermal and Fluid Science*, **30** (2006) 463-472.
- [6] J.-N. Tourvieille, F. Bornette, R. Philippe, Q. Vandenberghe, C.d. Bellefon, Mass transfer characterisation of a microstructured falling film at pilot scale, *Chemical Engineering Journal*. (doi: 10.1016/j.cej.2012.07.095)
- [7] A.D. Anastasiou, C. Makatsoris, A. Gavriilidis, A.A. Mouza, Application of  $\mu$ -PIV for investigating liquid film characteristics in an open inclined microchannel, *Experimental Thermal and Fluid Science*, **44** (2013) 90-99.
- [8] F.W. Pierson, S. Whitaker, Some Theoretical and Experimental Observations of the Wave Structure of Falling Liquid Films, *Ind. Eng. Chem., Fundam.*, **4** (1977) 401-408.
- [9] S. Giljean, M. Bigerelle, K. Anselme, H. Haidara, New insights on contact angle/roughness dependence on high surface energy materials, *Applied Surface Science*, **257** (2011) 9631-9638.
- [10] M.m. Al-Rawashdeh, A. Cantu-Perez, D. Ziegenbalg, P. Löb, A. Gavriilidis, V. Hessel, F. Schönfeld, Microstructure-based intensification of a falling film microreactor through optimal film setting with realistic profiles and in-channel induced mixing, *Chemical Engineering Journal*, **179** (2012) 318-329.
- [11] D.E. Hartley, W. Murgatroyd, Criteria for the break-up of thin liquid layers flowing isothermally over solid surfaces, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **7** (1964) 1003-1015.
- [12] M. Scholle, N. Aksel, An exact solution of visco-capillary flow in an inclined channel, *Z. angew. Math. Phys.*, **52** (2001) 749-769.
- [13] S. Portalski, Velocities in film flow of liquids on vertical plates, *Chemical Engineering Science*, **19** (1964) 575-582.