

## Jakub DZIERLA, Maciej STASZAK, Krzysztof ALEJSKI

e-mail: jakub.w.dzierla@doctorate.put.poznan.pl

Instytut Technologii i Inżynierii Chemicznej, Wydział Technologii Chemicznej, Politechnika Poznańska, Poznań

# Badanie mieszania i transportu masy w przepływowym układzie ciecz-ciecz z wykorzystaniem technik CFD

## Wstęp

Przepływ segmentowy typu ciecz-ciecz w układach mikroprzepływowych ma wiele zalet nad konwencjonalnymi reaktorami. Wysoki stosunek powierzchni międzyfazowej do objętości, krótka droga dyfuzji, łatwa kontrola temperatury oraz łatwość w zapewnieniu jednolitych warunków procesowych wzdłuż reaktora sprawiają, że mikroreaktory znajdują wiele zastosowań zarówno jako narzędzia badawcze jak i w intensyfikacji procesów wymiany masy. Wydajny transport masy pomiędzy fazami jest możliwy dzięki wewnętrznej cyrkulacji, obecnej w każdym z następujących po sobie segmentów, generowanych przez siły ścinające pomiędzy rdzeniem segmentów a ściankami mikroreaktora.

## Badania doświadczalne

### Układ badawczy

W pracy skupiono się na przebadaniu procesu mieszania połączonego z transportem masy w przepływie segmentowym generowanym w mikroreaktorze typu T o średnicy 3 mm. W tym celu przygotowano 0,1 M roztwór  $\text{CH}_3\text{COOH}$  w toluenie, stanowiący fazę donorową oraz 0,01 M roztwór  $\text{NaOH}$  w wodzie, stanowiący fazę akceptorową.

Postęp reakcji był śledzony dzięki zmianie barwy błękitu bromotymolowego w fazie wodnej w trakcie neutralizacji wodorotlenku sodu. W ten sposób przebadano 11 układów różniących się całkowitym natężeniem przepływu  $Q_{tot}$  oraz stosunkiem natężenia przepływu fazy wodnej do natężenia przepływu fazy organicznej  $q = Q_{aq}/Q_{org}$ .

Wszystkie pomiary były rejestrowane za pomocą aparatu fotograficznego. Na podstawie analizy zdjęć wyznaczono długość segmentu fazy wodnej  $L_{s_{aq}}$ , długość segmentu fazy organicznej  $L_{s_{org}}$  oraz odległość potrzebną do całkowitego odbarwienia, która została przeliczona na czas neutralizacji  $T_n$  zgodnie ze wzorem

$$T_n = \frac{D_n}{u} \quad (1)$$

gdzie:

$D_n$  – dystans neutralizacji, [m]

$T_n$  – czas neutralizacji, [s]

$u$  – prędkość przepływu mieszaniny, [m/s]

### Dyssypacja energii

Wydajność transportu masy można bezpośrednio połączyć z jakością mieszania w mikroreaktorach. Wielu badaczy wykorzystuje dyssypację energii do opisu skuteczności mieszania [Tanthapanichakoon i in., 2006; Biswas i in., 2015; Vandermeersch i in., 2015]

$$\varepsilon = \frac{\Delta P}{\rho \tau} \quad (2)$$

gdzie:

$\Delta P$  – spadek ciśnienia, [Pa]

$\rho$  – gęstość, [ $\text{kg}/\text{m}^3$ ]

$\tau$  – czas przebywania, [s]

Spadek ciśnienia może być policzony z równania Darcy'ego-Weisbacha

$$\Delta P = \frac{\rho f L u^2}{144 \cdot 2 D g} \quad (3)$$

gdzie:

$f$  – współczynnik tarcia Moody'ego/Darcy'ego, [-]

$D$  – średnica mikroreaktora, [m]

$g$  – przyspieszenie ziemskie, [ $\text{m}/\text{s}^2$ ]

$L$  – długość mikroreaktora, [m]

## Modelowanie CFD

Proces mieszania został odtworzony z wykorzystaniem obliczeniowej dynamiki płynów (CFD) za pomocą popularnej metody *Volume of Fluid*. Do obliczeń zastosowano oprogramowanie *ANSYS Fluent*. W celu odtworzenia samego procesu mieszania w modelowanym segmencie generowano strukturę przepływu, następnie jego przednią połowę inicjalizowano obecnością barwnika, po czym przeprowadzono właściwe obliczenia.

### Ułamek rozproszenia masy

W celu określenia skuteczności mieszania zdecydowano się na śledzenie zmian wartości ułamka rozproszenia masy, opisanego wzorem [MacInnes i in., 2005; Tanthapanichakoon i in., 2006; Aubin i in., 2010]

$$\delta = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n V_i (C_i - \bar{C})^2}{V_{tot}}} \quad (4)$$

gdzie:

$\bar{C}$  – średnie stężenie barwnika, [ $\text{mol}/\text{m}^3$ ]

$C_i$  – stężenie barwnika w komórce  $i$ , [ $\text{mol}/\text{m}^3$ ]

$V_i$  – objętość  $i$ -tej komórki obliczeniowej, [ $\text{m}^3$ ]

$V_{tot}$  – całkowita objętość obszaru obliczeniowego, [ $\text{m}^3$ ]

## Wyniki i dyskusja

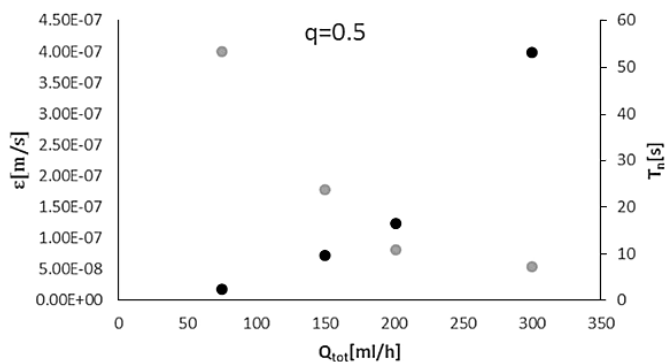
W tab. 1 podano wyniki pomiarów uwzględniające całkowite natężenie przepływu  $Q_{tot}$ , długość segmentu fazy wodnej  $L_{s_{aq}}$  oraz organicznej  $L_{s_{org}}$  i czas neutralizacji  $T_n$ .

Widać wyraźnie, że zwiększanie natężenia przepływu  $Q_{tot}$  wpływa na skrócenie długości obu segmentów  $L_{s_{aq}}$  i  $L_{s_{org}}$ , co ma również przełożenie na krótszy czas neutralizacji  $T_n$ . Ponadto zmniejszenie stosunku natężenia przepływu fazy wodnej do organicznej  $q$  ma pozytywny wpływ na transport masy, co przejawia się krótszym czasem neutralizacji  $T_n$ .

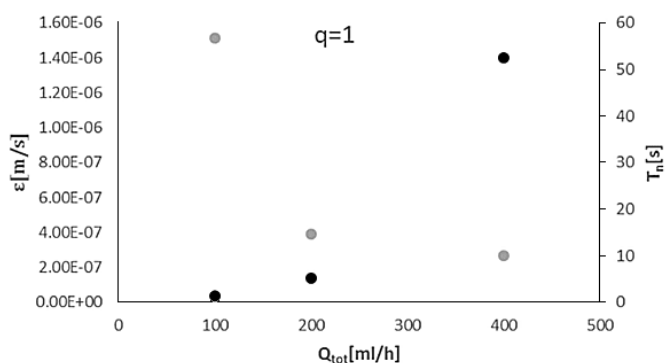
Na rys. 1-3 przedstawiono porównanie wartości dyssypacji energii  $\varepsilon$  z czasem neutralizacji  $T_n$  dla serii pomiarów o stosunku natężenia przepływu fazy wodnej do fazy organicznej  $q$  odpowiednio 0,5; 1 oraz 2. W każdym z przypadków widać wyraźnie, iż zwiększona wartość dyssypacji energii skutkuje krótszym czasem neutralizacji.

Tab. 1. Zestawienie wyników badań doświadczalnych

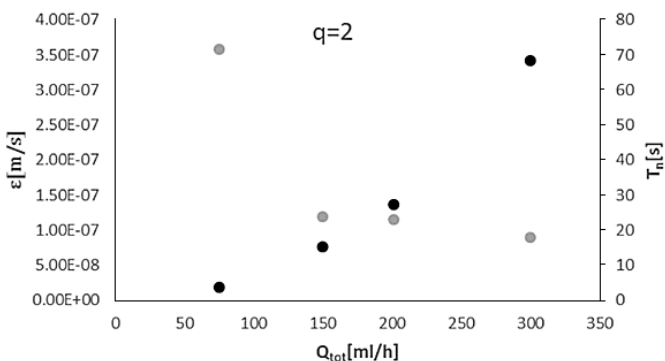
q	$Q_{tot}$ [ml/h]	$L_{s_{aq}}$ [mm]	$L_{s_{org}}$ [mm]	$T_n$ [s]
1	400	8,03	4,66	10,12
1	200	8,79	5,17	13,76
1	100	9,77	6,13	42,24
2	300	11,81	3,43	17,98
2	201	12,63	3,62	19,75
2	150	12,99	4,13	23,92
2	75	15,20	4,87	66,50
0,5	300	5,93	8,43	7,21
0,5	201	6,53	9,11	10,76
0,5	150	6,43	9,43	23,75
0,5	75	7,69	11,62	39,36



Rys. 1. Porównanie wartości dyssypacji energii  $\epsilon$  z czasem neutralizacji  $T_n$  dla stosunku natężenia przepływu fazy wodnej do organicznej równego 0,5



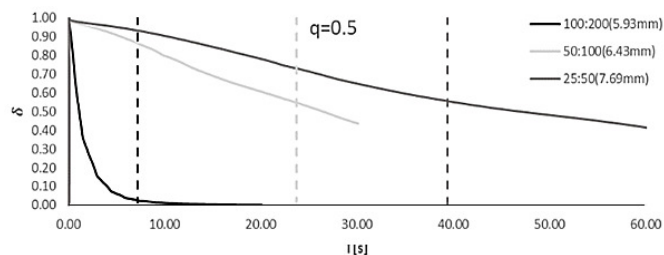
Rys. 2. Porównanie wartości dyssypacji energii  $\epsilon$  z czasem neutralizacji  $T_n$  dla stosunku natężenia przepływu fazy wodnej do organicznej równego 1,0



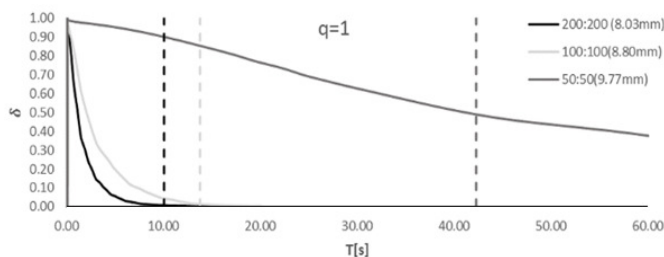
Rys. 3. Porównanie wartości dyssypacji energii  $\epsilon$  z czasem neutralizacji  $T_n$  dla stosunku natężenia przepływu fazy wodnej do organicznej równego 2,0

W badanym układzie dyssypacja energii jest ściśle zależna od spadku ciśnienia wzdłuż mikroreaktora, który wynika bezpośrednio z chaotyczności, czy też turbulencji przepływu. Im większa chaotyczność przepływu, tym lepsze mieszanie w mikroreaktorze.

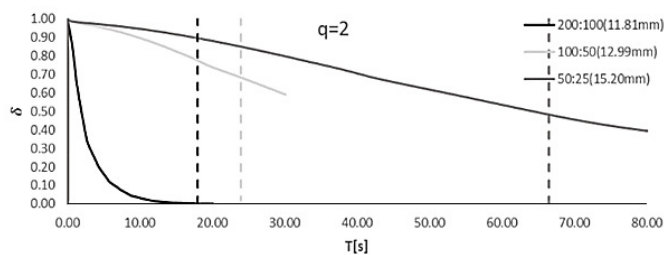
Rys. 4-6 przedstawiają wyniki obliczeń numerycznych wykonanych na dziewięciu wybranych układach. Na wykresach linią ciągłą przedstawiono zmiany w czasie wartości ułamka rozproszenia masy, natomiast linią przerywaną zaznaczono zmierzony eksperymentalnie czas neutralizacji. Wyniki symulacji dla całkowitego natężenia przepływu 300 ml/h oraz 200 ml/h są w dobrej zgodności z wynikami eksperymentalnymi. W przypadkach, gdy całkowite natężenie przepływu  $Q_{tot}$  jest mniejsze niż 200 ml/h, widać wyraźnie, że czas potrzebny na osiągnięcie idealnego wymieszania (dla  $\delta = 0$ ) nie pokrywa się z czasem neutralizacji  $T_n$ . Z jednej strony może świadczyć to o dominującej roli dyfuzji w tym obszarze przepływu, a z drugiej może sugerować konieczność wykorzystania bardziej złożonego modelu numerycznego w przyszłych badaniach.



Rys. 4. Zmiany wartości ułamka rozproszenia masy dla modelowanych układów o wartości  $q = 0,5$ ; linią przerywaną zaznaczono zmierzony czas neutralizacji  $T_n$



Rys. 5. Zmiany wartości ułamka rozproszenia masy dla modelowanych układów o wartości  $q = 1,0$ ; linią przerywaną zaznaczono zmierzony czas neutralizacji  $T_n$



Rys. 6. Zmiany wartości ułamka rozproszenia masy dla modelowanych układów o wartości  $q = 2,0$ ; linią przerywaną zaznaczono zmierzony czas neutralizacji  $T_n$

## Wnioski

Otrzymane wyniki mogą stanowić podstawę do dalszych rozważań nad mechanizmami mieszania i transportu masy w przepływowych układach dwufazowych, jak również problemu skalowalności układów mikroprzepływowych.

Wyniki symulacji sugerują większą złożoność reakcyjnego układu przepływowego typu ciecz-ciecz niż początkowo zakładano, co wiąże się z koniecznością zastosowania podejścia uwzględniającego transport masy przez powierzchnię międzyfazową w połączeniu z mieszaniami wewnątrz segmentów generowanym w mikroreaktorach.

Wartości dyssypacji energii wykazują silną zależność w stosunku do szybkości neutralizacji w badanych układach i mogą stanowić dobrą podstawę do szacowania wydajności transportu masy podczas projektowania mikroreaktorów.

## LITERATURA

- Aubin, J., Ferrando, M., Jiricny, V., (2010). Current methods for characterizing mixing and flow in microchannels. *Chem. Eng. Sci.*, 65, 2065-2093. DOI: 10.1016/j.ces.2009.12.001
- Biswas, K.G., Patra, R., Das, G., Ray, S., Basu, J.K., (2015). Effect of flow orientation on liquid-liquid slug flow in a capillary tube. *Chem. Eng. J.*, 262, 436-446. DOI: 10.1016/j.cej.2014.09.122
- MacInnes, J.M., Chen, Z., Allen, R.W.K., (2005). Investigation of alternating-flow mixing in microchannels. *Chem. Eng. Sci.*, 60, 3453-3467. DOI: 10.1016/j.ces.2005.01.019
- Tanthapanichakoon, W., Aoki, N., Matsuyama, K., Mae, K., (2006). Design of mixing in microfluidic liquid slugs based on a new dimensionless number for precise reaction and mixing operations. *Chem. Eng. Sci.*, 61, 4220-4232. DOI: 10.1016/j.ces.2006.01.047
- Vandermeersch, T., Goovaerts, R., Luyten, J., Denayer, J.F.M., De Malsche, W., (2015). Tracking the liquid-liquid extraction performance in mesoflow reactors. *Chem. Eng. J.*, 279, 9-17. DOI: 10.1016/j.cej.2015.04.150