

Diss. ETH No. 17965

MULTIPHASE FLOW IN MICROCHANNELS:  
HYDRODYNAMICS AND IMPLEMENTATION IN  
PROCESS ENGINEERING

A dissertation submitted to

ETH ZURICH

for the degree of

Doctor of Sciences

presented by

Donata Maria Fries

Dipl.-Ing.

(Dresden University of Technology)

born on March 10, 1981

in Dresden (Germany)

citizen of

Federal Republic of Germany

Accepted on the recommendation of

Prof. Dr., Dr. h.c. Philipp Rudolf von Rohr (ETH Zürich), examiner

Prof. Dr. Volker Hessel (Eindhoven University of Technology),

co-examiner

Zurich, 2008



# Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird der Einfluss der Kanalgeometrie auf die Strömungsmechanik und den Stofftransport in Mikroreaktoren experimentell und theoretisch untersucht. Durch die Miniaturisierung der charakteristischen Abmessung in einem Rohrreaktor entsteht zum einen ein sehr großes Oberflächen-Volumen-Verhältnis, zum anderen dominieren Oberflächen- und Viskositätskräfte gegenüber Gravitations- und Trägheitskräften. Durch diese Besonderheiten sind Mikroreaktoren ein wichtiges Werkzeug in der Prozessintensivierung.

Diese Arbeit bietet hauptsächlich einen Beitrag zum Verständnis des komplexen Zusammenspiels zwischen Kanalgeometrie, ausgebildeter Strömung und erzieltm Stoffübergang. Es konnte gezeigt werden, dass für mehrphasige Mikroreaktoren der Stoffübergang und -transport durch die Strömung, welche wiederum von der Kanalgeometrie beeinflusst wird, intensiviert werden kann.

Die in dieser Arbeit verwendeten Mikroreaktoren hatten eine Kanalbreite von  $w = 100 \dots 400 \mu\text{m}$  und eine Kanalhöhe von  $h = 120 \dots 360 \mu\text{m}$ . Die Länge des Mikrokanals variierte zwischen  $30 \text{ mm}$  und  $2 \text{ m}$ . Die Reaktoren bestanden aus PolyDiMethylSiloxan (PDMS)/Glas bzw. Silizium/Glas und wurden im Reinraum mittels photolithographischer Methoden gefertigt. Im Kanaldesign wurde die Einlassgeometrie, die Kanalführung und das Reaktorende inklusive Phasentrennung variiert. Als Modellreaktion diente die Absorption von  $\text{CO}_2$  in eine basische Lösung und die Extraktion von Vanillin aus der wässrigen Phase.

Die experimentelle Untersuchung der Mehrphasenströmung erfolgte mittels optischer Messmethoden. Laserinduzierte Fluoreszenz wurde für die Charakterisierung der Strömungsregime und der Phasengrenzflächen genutzt. Das Geschwindigkeitsfeld in der flüssigen Phase wurde mittels  $\mu$ -Particle-Image-Velocimetry bestimmt. Alle Messungen erfolgten in halber Kanalhöhe. Die Geschwindigkeitsprofile wurden zusätzlich numerisch ermittelt. Desweiteren wurde der Druckverlust über dem

gesamten Mikrokanal bestimmt. Die chemische Analyse der Produkte erfolgte durch die Messung des pH-Wertes (Absorption von  $CO_2$ ), UV/Vis-Spektroskopie und GC/MS (Extraktion von Vanillin).

Die resultierende Strömung wird im Bereich der untersuchten Strömungsgeschwindigkeiten ( $u = 1.1 \cdot 10^{-3} \text{ m/s} \dots 0.5 \text{ m/s}$ ) und Volumenstromverhältnisse ( $V_1 : V_2 = 1 : 6 \dots 1 : 1$ ) durch die Einlassgeometrie festgelegt. Während ein Y-förmiger Einlass bevorzugt Schichtenströmung bildet, kann durch eine T-förmige Injektion der dispersen Phase eine stabile Taylorströmung sowohl für gas-flüssig als auch für flüssig-flüssig Strömungen ausgebildet werden. Die resultierende Tropfengröße hängt nicht nur von den Geschwindigkeiten, sondern auch von der Kanalgeometrie ab: Wird die disperse Phase in Strömungsrichtung mit einem schmalen Einlass injiziert, erfolgt der Abriss relativ früh und es entstehen kleine Tropfen/Blasen. Große Gasblasen/Tropfen können durch Injektion entgegen der Strömungsrichtung erzeugt werden. In den Flüssigkeitssegmenten ist eine Erhöhung des Stofftransportes durch das Einfügen von Meandrierungen möglich. Dabei wird in der Kanalkrümmung der innere Wirbel in die äußere Hälfte gedrückt und leicht nach hinten verschoben. Der Wirbel in der äußeren Kanalhälfte wird geteilt und verschwindet bei hohen Geschwindigkeiten. Eine effektive Phasentrennung innerhalb des Mikroreaktors ist mit Hilfe von Kapillarkräften bzw. unterschiedlichen Benetzungseigenschaften möglich.

Eine Intensivierung des Stoffübergangs ist durch eine optimierte Strömung möglich. In Abhängigkeit der geforderten Durchsatzrate kann dies unterschiedliche Kanalgeometrien und Strömungsformen verlangen: Für kleine Durchsatzraten ( $\approx 100 \mu\text{l}/\text{min}$ ) ist die Schichtenströmung mit einer kleinen Kanalbreite ( $< 200 \mu\text{m}$ ) zu bevorzugen, da der Stofftransportwiderstand durch die kurzen Diffusionswege sehr klein wird. Zusätzlich kann die Trennung beider Phasen im Mikroreaktor realisiert werden. Für größere Durchsatzraten ist dieses Strömungsregime nicht optimal. Zum einen ist aufgrund des Druckverlustes der Kanalquerschnitt zu vergrößern, was zu einer signifikanten Erhöhung der Diffusionszeit führt, zum anderen ist die Phasentrennung bei hohen Geschwindigkeiten schwieriger. Eine Taylorströmung mit kleinen Tropfen ermöglicht bei hohen Durchsätzen sowohl eine große spezifische Austauschfläche als auch einen intensivierten Stofftransport. Der gesamte Stoffübergang kann im Fall einer Taylorströmung mit gekrümmten Kanälen durch eine beschleunigte Oberflächenenerneuerung verbessert werden.

# Abstract

In this thesis the influence of the channel geometry on hydrodynamic properties and on the mass transfer is investigated by experimental and numerical methods. Miniaturization of characteristic dimensions leads to a large surface-to-volume ratio. Surface and viscous forces dominate over gravitational and inertial forces. Due to these features microreactors are an important tool in process intensification.

This thesis mainly contributes to the understanding of the complex interplay between channel geometry, formed flow pattern and obtained mass transfer. For multiphase microfluidics we demonstrate the intensification of mass transfer and mass transport by optimizing the flow properties. The microreactors had a channel width of  $w = 100...400 \mu\text{m}$  and a channel height of  $h = 120...360 \mu\text{m}$ . The length of the microchannel was varied between  $30 \text{ mm}$  and  $2 \text{ m}$ . The reactors were made of PolyDiMethylSiloxane (PDMS)/glass and Si/glass respectively and were fabricated using photolithographic methods in the cleanroom. Inlet geometry, channel design and outlet geometry with phase separation were varied in the different experiments. As a model reaction the absorption of  $\text{CO}_2$  into an alkaline solution as well as the extraction of vanillin from an aqueous solution were tested.

Experimental investigation of multiphase flow was carried out using optical methods. Laser Induced Fluorescence was applied to characterize the flow pattern and the interfacial area. The velocity field in the liquid phase was determined by  $\mu$ -Particle-Image-Velocimetry. All measurements were performed at medium channel height. The velocity fields were identified numerically as well. Furthermore the pressure drop was determined over the complete microchannel. Chemical analysis was done using pH-analysis (in the case of  $\text{CO}_2$ -absorption), UV/Vis-spectroscopy and GC/MS (in the case of the vanillin extraction).

In the investigated velocity range ( $u = 1.1 \cdot 10^{-3} \text{ m/s}...0.5 \text{ m/s}$ ) and flow ratio ( $V_1 : V_2 = 1 : 6...1 : 1$ ) the resulting flow pattern is influenced by the

inlet geometry. While a Y-shaped design normally creates a stratified flow, a stable Taylor flow can be obtained by injecting the dispersed phase in a T-design. This applies gas-liquid and liquid-liquid flow. The resulting slug length depends not only on the velocities but also on the channel design: if the dispersed phase is injected in the main flow direction with a narrow inlet, small slugs/bubbles will be created. Large slugs/bubbles can be formed with the opposite injection direction. An enhancement of mass transfer within the liquid slugs by using meandering channels is feasible. Then the inner vortex in the bend moves to the outer half and is shifted back. The outer vortex is divided into two vortices and disappears at high velocities. An effective phase separation on the chip is possible by means of capillary forces and different wetting properties respectively. Changing fluid properties affect the hydrodynamic properties as well. This is most distinct for changes in surface tension and viscosity.

Optimized hydrodynamics favor an intensified mass transfer. Depending on the required flow rate different reactor designs are favored: For small flow rates ( $\approx 100 \mu\text{l}/\text{min}$ ) stratified flow at small channel width ( $< 200 \mu\text{m}$ ) may be preferred. Due to short diffusion paths the mass transfer resistance will be small. Additionally phase separation can be implemented on the chip easily. At higher flow rates this flow regime suffers from reduced mass transfer coefficients due to the increased cross section area and from poor phase separation. At higher flow rates, a large specific interfacial area and an intensified mass transfer is realized for Taylor flow with small slug lengths. The overall mass transfer in Taylor flow can be improved by meandering channels, providing fast surface renewal.