

## Гидродинамика и массообмен при снарядном течении газожидкостной системы в микроканалах

Р. Ш. Абиев, И. В. Лаврецов

*РУФАТ ШОВКЕТОВИЧ АБИЕВ — доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой оптимизации химической и биотехнологической аппаратуры Санкт-Петербургского государственного технологического института (технического университета) (СПбГТИ (ТУ)). Область научных интересов: гидродинамика многофазных сред, физические методы интенсификации тепло- и массообменных процессов, мини- и микроаппараты химических производств. rufat.abiev@gmail.com*

*ИГОРЬ ВАЛЕНТИНОВИЧ ЛАВРЕЦОВ — ассистент кафедры оптимизации химической и биотехнологической аппаратуры СПбГТИ (ТУ). Область научных интересов: мини- и микроаппараты химических производств. lavretsov.igor@gmail.com*

*190013 Санкт-Петербург, Московский просп., 26, Санкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет).*

### ОБОЗНАЧЕНИЯ ИСПОЛЬЗУЕМЫХ ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИХ ВЕЛИЧИН

$a$ — площадь поверхности контакта фаз, $\text{м}^2/\text{м}^3$	$u_l$ — локальная скорость среды, $\text{м}/\text{с}$
$A_b$ — площадь поперечного сечения пузырька, $\text{м}^2$	$U_b$ — скорость пузырька, $\text{м}/\text{с}$
$A_c$ — площадь поперечного сечения капилляра, $\text{м}^2$	$U_f$ — скорость жидкости в пленке, $\text{м}/\text{с}$
$A_f$ — площадь поперечного сечения пленки, $\text{м}^2$	$U_G$ — скорость газа, приведенная к полному сечению капилляра, $\text{м}/\text{с}$
$C_1$ — безразмерная константа	$U_L$ — скорость жидкости, приведенная к полному сечению капилляра, $\text{м}/\text{с}$
$C_0$ — безразмерная константа модели проскальзывания	$U_s$ — скорость жидкости в жидкостном снаряде, приведенная к полному сечению капилляра $A_c$ (скорость двухфазного потока), $\text{м}/\text{с}$
$d_c$ — диаметр капилляра, $\text{м}$	$w$ — скорость относительного движения пузырька, $\text{м}/\text{с}$
$D$ — коэффициент диффузии, $\text{м}^2/\text{с}$	$w_b$ — скорость скольжения пузырька относительно неподвижной жидкости, $\text{м}/\text{с}$
$g$ — ускорение свободного падения, $\text{м}/\text{с}^2$	$x$ — осевая координата, $\text{м}$
$J$ — безразмерная скорость движения наиболее быстрых элементов жидкости относительно пузырька, приведенная к средней скорости жидкостного снаряда	$\beta$ — расходное газосодержание, отн. ед.
$k$ — коэффициент массопереноса, $\text{м}/\text{с}$	$\gamma$ — угол между вектором скорости двухфазной смеси в капилляре $U_s$ и вектором ускорения свободного падения $g$
$L$ — длина капилляра, $\text{м}$	$\gamma_m$ — корни функции Бесселя второго порядка: $J_2(\gamma) = 0$
$L_f$ — длина пленки жидкости, $\text{м}$	$\delta$ — толщина пленки вокруг пузырька, $\text{м}$
$L_s$ — приведенная длина жидкостного снаряда, $\text{м}$	$\epsilon_A$ — относительная площадь пузырька, отн. ед.
$L_{UC}$ — длина ячейки, $\text{м}$	$\epsilon_L$ — относительная длина пузырька, отн. ед.
$n$ — безразмерный коэффициент	$\epsilon_V$ — объемная доля газа (объемное газосодержание), отн. ед.
$N_{UC}$ — количество ячеек по длине капилляра, отн. ед.	$\eta$ — отношение скоростей пузырька и двухфазного потока, $\eta = U_b/U_s$ , отн. ед.
$p$ — давление, $\text{Па}$	$\mu$ — динамическая вязкость, $\text{Па}\cdot\text{с}$
$\Delta p_{\text{trans}}$ — потери давления в капилляре, обусловленные перестройкой профиля скорости в жидкостных снарядах, $\text{Па}$	$\nu$ — коэффициент кинематической вязкости, $\text{м}^2/\text{с}$
$\Delta p_{\Delta F}$ — потери давления, обусловленные образованием новой поверхности при движении пузырьков, $\text{Па}$	$\rho$ — плотность, $\text{кг}/\text{м}^3$
$Q_f$ — средний объемный расход жидкости в пленке, $\text{м}^3/\text{с}$	$\sigma$ — межфазное натяжение, $\text{Н}/\text{м}$
$q_b$ — расход газа, обусловленный движением пузырька (локальный), $\text{м}^3/\text{с}$	
$q_f$ — расход жидкости в пленке (локальный), $\text{м}^3/\text{с}$	
$q_s$ — расход жидкости в жидкостном снаряде (локальный), $\text{м}^3/\text{с}$	
$R$ — радиус капилляра, $\text{м}$	
$R_b$ — радиус пузырька, $\text{м}$	
$t_f$ — время контакта газового пузырька с пленкой жидкости, $\text{с}$	

### Критерии подобия

$$Bo = \frac{(\rho_1 - \rho_2) d_c^2 g \cos \gamma}{\sigma} \quad \text{число Бонда модифицированное}$$

$$Ca = \frac{\mu_l U_b}{\sigma} \text{ --- капиллярное число}$$

$$Ca_s = \frac{\mu_l U_s}{\sigma} \text{ --- капиллярное число, рассчитанное через } U_s$$

Ca\* --- критическое капиллярное число

$$Fo = \frac{D t_f}{\delta^2} \text{ --- критерий Фурье, приведенный к толщине}$$

пленки жидкости

$$Gr = \frac{L}{d_c} \cdot \frac{1}{ReSc} = \frac{L}{d_c} \cdot \frac{1}{Pe} \text{ --- критерий Гретца}$$

$$Pe = ReSc = \frac{U_s d_c}{D} \text{ --- число Пекле}$$

$$Re = \frac{\rho_l U_s d_c}{\mu_l} \text{ --- число Рейнольдса}$$

$$Sh = \frac{k d_c}{D} \text{ --- число Шервуда}$$

$$Sc = \frac{\nu_l}{D} \text{ --- число Шмидта}$$

$$We = \frac{\rho_l U_s^2 d_c}{\sigma} \text{ --- число Вебера}$$

### Введение

В последние два десятилетия существенно возрос интерес к использованию мини- и микроаппаратов в химической технологии. Разработаны и выпускаются мелкими сериями высокоэффективные микротеплообменники, микросмесители, микрореакторы, микроэстракторы, микронасосы и микроклапаны [1]. Типичный для этих устройств поперечный размер каналов, по которым протекает материальный поток (газ, жидкость, газ—жидкость), лежит в диапазоне от 10 мкм до 1—3 мм.

Микрореакторы могут быть конкурентоспособными в следующих случаях: при проведении сравнительно быстро протекающих реакций (от долей секунд до 3—5 мин, в последнем случае в качестве реактора используются трубочки в виде змеевиков); когда скорость процесса лимитируется массопереносом; когда необходимо быстро отводить тепло от реагентов (например, на начальном участке проточного реактора). Эффективность процессов в микрореакторах обусловлена необычайно высокими значениями коэффициентов тепло- и массопереноса в этих устройствах, которые могут быть на два порядка выше, чем в реакторах традиционных типов [1].

Микрореакторы используются для проведения реакций в газовых смесях, в системах газ—жидкость и жидкость—жидкость [2, 4], а также для синтеза ионных жидкостей [5]. Одно из новых направлений развития микрореакторов — сочетание преимуществ течений в микроканалах с наложением дополнительных силовых

### Индексы

1 — сплошная среда (жидкость)

2 — дисперсная среда (газ)

a — система газ-жидкость, при которой получено уравнение (17)

b — пузырек

c — капилляр

d — система газ-жидкость, отличная от той, для которой было получено уравнение (17)

f — пленка

fs — пленка жидкость-твердое тело

gl — газ-жидкость

gf — газ-пленка жидкости

gs — газ-твердое тело

g, G — газ

ls — жидкость-твердое тело

s — жидкостной снаряд

tot — полный

полей, в частности, микроволн [6, 7]. Известны примеры применения микрореакторов в тонком органическом синтезе, межфазном катализе, при получении пероксида водорода и др. [8—10].

По конструкции микрореакторы можно разделить на два типа — одноканальные и многоканальные. Для проведения газожидкостных каталитических реакций используют одну из разновидностей многоканальных микрореакторов — так называемые монолитные катализаторы (катализаторы сотовой структуры) [8, 9], представляющие собой блок параллельно соединенных микроканалов (гидравлический диаметр от 0,3 до 1—3 мм), внутренняя поверхность которых покрыта катализатором. Для проведения газожидкостных каталитических реакций наиболее благоприятным режимом считается снарядное течение реакционной системы в микроканалах [3, 8] (рис. 1). В снарядном режиме течения газожидкостной смеси пузырьки газа отделены друг от друга жидкостными снарядами (слагами, slugs). При таком течении достигается хорошее перемешивание внутри жидкостного снаряда за счет так называемых тейлоровских вихрей, а также снижается диффузионный путь для молекул газа, проникающих через пленку жидкости между пузырьком и слоем катализатора [3, 8, 9].

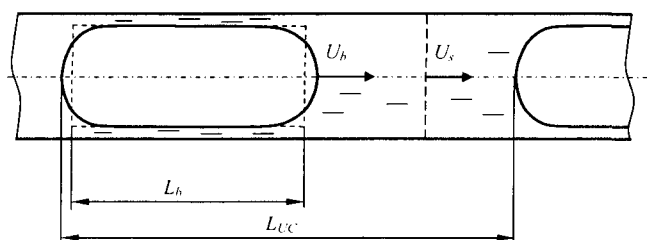


Рис. 1. Снарядный режим течения

\* В некоторых работах предлагается различать микро- и мини-масштаб. Границей между ними принято считать размер около 100 мкм. Верхней границей минимасштаба, по данным разных авторов, является размер от 1 до 4—5 мм. Четкого физически обоснованного критерия границ масштабов пока нет.

Математическому моделированию гидродинамики и массообмена в микрореакторах, что является предметом рассмотрения в данной статье, посвящено значительное число работ (см., например, [11–19]). В этих работах решение уравнений в частных производных осуществляется методом конечных элементов или конечных объемов, т.е. в каждом расчете реализуется численный эксперимент. Результаты расчетов дают важную информацию о линиях тока, о форме пузырьков и т.д., получить которую экспериментально весьма затруднительно. Вместе с тем каждое такое решение является точечным, поэтому серии численных экспериментов нуждаются в последующем теоретическом анализе и обобщении.

На тепло- и массоперенос в микрореакторах значительно влияют гидродинамические параметры газожидкостного потока, они определяют выход реакций и конверсию [3, 18, 20]. В работах [21–24] предпринята попытка построения математической модели, позволяющей обобщить многочисленные результаты экспериментальных исследований и численного моделирования снарядного (тейлоровского) течения газожидкостной смеси в микроканалах (капиллярах). Адекватность этой модели проверена частично по опытным данным других авторов, а в работе [25] — по собственным экспериментальным данным.

### Гидродинамика снарядного течения газожидкостной смеси в капиллярах

#### Скорость пузырьков и жидкости в жидкостных снарядах и в пленке

Расчетное и экспериментальное определение скорости пузырьков в капиллярах проведено в значительном числе работ [12, 15, 26–28], включая фундаментальные работы [29–31].

В работе [21] на основе уравнения неразрывности и уравнения сохранения импульса для гетерогенной системы жидкость—газ (жидкость—жидкость) в предположении об осевой симметрии потока и преобладания сил поверхностного натяжения и сил вязкого трения над силами инерции (число Вебера  $We \ll 1$ ) построена математическая модель гидродинамики газожидкостного потока в снарядном режиме течения в капиллярах:

$$U_f A_f + U_b A_b = U_s A_c \quad (1)$$

$$\frac{\delta}{R} = \frac{1,34 \cdot Ca^{2/3}}{1 + 3,35 \cdot Ca^{2/3}} \quad (2)$$

$$q_f = \frac{\pi}{8V_1} \left( g_x - \frac{1}{\rho_1} \frac{\partial p}{\partial x} \right) (R^2 - R_b^2)^2 - \pi C_1 \left( \frac{R^2 - R_b^2}{2} - R_b^2 \ln \left( \frac{R}{R_b} \right) \right) \quad (3)$$

$$q_b = \frac{\pi}{4} g_x \left[ \frac{R_b^2 (R^2 - R_b^2)}{V_1} + \frac{R_b^4}{2V_2} \right] - \frac{\pi}{4} \frac{\partial p}{\partial x} \left[ \frac{R_b^2 (R^2 - R_b^2)}{\mu_1} + \frac{R_b^4}{2\mu_2} \right] - \pi C_1 R_b^2 \ln \left( \frac{R}{R_b} \right) \quad (4)$$

$$\frac{\partial p}{\partial x} = [(G_2 - G_3)g_x - q_s] / G_1 \quad (5)$$

где  $g_x$  — проекция вектора ускорения свободного падения на ось  $x$

$$G_1 = \frac{\pi}{8} \left[ \frac{R^4 - R_b^4}{\mu_1} + \frac{R_b^4}{\mu_2} \right], \quad G_2 = \frac{\pi}{8} \left[ \frac{R^4 - R_b^4}{V_1} + \frac{R_b^4}{V_2} \right]$$

$$G_3 = \frac{\pi}{4} \cdot \frac{\rho_1 - \rho_2}{\mu_1} R_b^2 (R^2 - R_b^2) \quad (6)$$

Для замыкания математической модели используется уравнение (2) Ауссилуса—Керэ [30], позволяющее найти толщину пленки  $\delta$  вокруг пузырьков. По той модели рассчитаны профили скорости в пузырьке, в пленке и в жидкости между пузырьками при граничных условиях: на поверхности пузырька — четвертого рода, на стенке капилляра скорость равна нулю. Результаты расчетов хорошо согласуются с опытными данными [15, 27].

В работах [21, 22] теоретически обоснован выявленный ранее экспериментально [27] бифуркационный характер зависимости скорости скольжения пузырьков относительно двухфазной смеси для восходящего и нисходящего потоков. Дано объяснение причин останковки пузырьков в капиллярах малого диаметра, закрытых с одного конца [21]. Показано, что касательные напряжения на поверхности пузырька (капли) и градиент давления вдоль пузырька могут быть довольно значительными ( $\partial p / \partial x \approx 1000$  Па/м), что определяет форму границы раздела фаз [32]. В результате расчетов по предложенной модели подтверждено асимптотическое значение скорости движения пузырька ( $\eta = U_b / U_s \approx 2,5$ ), полученное ранее экспериментально [27].

#### Циркуляционный и байпасный режимы течения

Снарядный режим течения можно условно поделить на два типа: циркуляционный и байпасный (рис. 2). В первом случае жидкостные снаряды не сообщаются друг с другом, так как отделяющие их пузырьки газа занимают практически все поперечное сечение капилляра; пленка жидкости, отделяющая пузырек от стенки капилляра составляет 10–100 мкм. При байпасном режиме течения пленка жидкости, отделяющая пузырек газа от стенки канала, может занимать до 30% поперечного сечения, в этом случае наблюдается продольное обтекание пузырька жидкостью.

Циркуляционные течения Тейлора являются одним из главных факторов интенсификации тепло- и массопереноса [16, 18]. Поэтому для расчета гидродинамики жидкостного потока в капиллярах необходимо располагать априорной информацией о циркуляции в жидкостных снарядах.

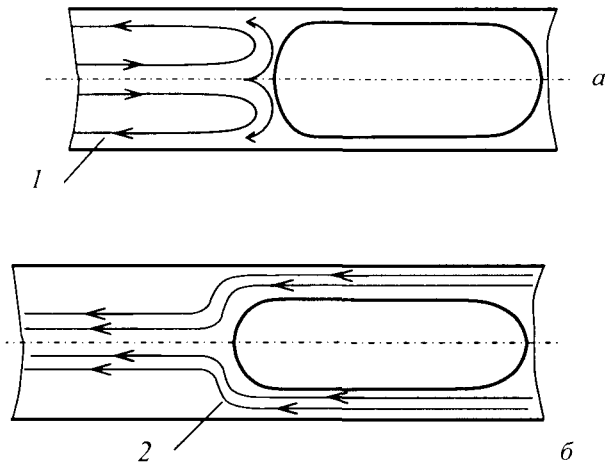


Рис. 2. Схемы возможных режимов течения:

*a* — циркуляционный режим течения; *б* — байпасный режим течения; 1 — линии тока жидкости при циркуляционном режиме течения; 2 — линии тока жидкости при байпасном режиме течения

На основе построенной в [21] математической модели гидродинамики снарядного газожидкостного потока в капиллярах в работе [22] теоретически обоснованы границы существования байпасного и циркуляционного режимов обтекания пузырьков при снарядном течении газожидкостной системы. Распределение скорости в жидкостном снаряде параболическое, а максимальная скорость жидкости в снаряде составляет  $\max(u_1) = 2U_s$ . Скорость движения наиболее быстрых элементарных объемов жидкости относительно пузырька, приведенная к средней скорости жидкостного снаряда, определяется выражением:

$$J = \frac{\max(u_1) - U_b}{U_s} = \frac{2U_s - U_b}{U_s} = 2 - \frac{U_b}{U_s} \quad (7)$$

В [22] предложен критерий перехода  $J$  от циркуляционного течения к байпасному: при  $J > 0$  ( $U_b/U_s < 2$ ) — течение циркуляционное, при  $J < 0$  ( $U_b/U_s > 2$ ) — байпасное. Правомерность этого критерия проверена для различных жидкостей, в частности, для воды, декана, тетрадекана [15], и для двух типов силиконовых масел [27], а также для модифицированных силиконовых масел с межфазным натяжением  $\sigma$  0,2 и 0,004 Н/м, соответственно.

В качестве обобщенного критерия, характеризующего баланс сил тяжести и поверхностных сил, в работе [22] использовано модифицированное число Бонда, которое учитывает направление потока газожидкостной смеси в капилляре относительно положения капилляра:

$$Bo = \frac{(\rho_1 - \rho_2) d_c^2 g \cos \gamma}{\sigma} \quad (8)$$

Для критического капиллярного числа, при котором происходит переход от циркуляционного режима течения к байпасному, найдена аппроксимация [22]:

$$Ca^* = 0,7378 + 0,0408 Bo + 3,5794 \cdot 10^{-4} Bo^2 - 1,0799 \cdot 10^{-5} Bo^3 \quad (9)$$

Вопреки опубликованному в работе [16] предположению, в [33] аналитически и на основе численного моделирования удалось показать, что циркуляция возникает даже в очень коротких жидкостных снарядах, по крайней мере, при отношении диаметра капилляра к длине жидкостного снаряда  $d_c/L_s \leq 15$ .

#### Объемное газосодержание и относительная длина пузырьков

Доказано существенное влияние длины пузырьков и жидкостных снарядов на интенсивность массопереноса в капиллярах от газа к жидкости и далее к поверхности капилляра [18, 20, 34, 35]. Поэтому при изучении гидродинамики потоков в капиллярах необходимо знать объемную долю газа в газожидкостном потоке и относительную длину пузырьков.

В работах по гидродинамике снарядного течения в капиллярах, например в [36, 37], применяют соотношения, связывающие объемное  $\epsilon_V$  и расходное  $\beta$  газосодержания (расходное содержание — это отношение расхода газа к суммарному расходу газа и жидкости) либо простым равенством ( $\epsilon_V \approx \beta$ ), либо корреляцией Арманда [38] ( $\epsilon_V \approx 0,833 \beta$ ). При этом связь между скоростью пузырьков  $U_b$  и скоростью двухфазного потока  $U_s$  представляется соотношением  $U_b = C_0 U_s + w_b$  [36, 37].

Эти приближения допустимы при малых скоростях сред с низкой и умеренной вязкостью, т.е. при значениях капиллярных чисел  $Ca \ll 1$ , когда скорость пузырьков незначительно превышает скорость двухфазного потока [23].

Взаимосвязь объемного и расходного газосодержания в газожидкостной смеси, протекающей в капиллярах диаметром 530 мкм и менее, изучали в работах [39, 40]. Выявлены заметное отличие режимов течения и аномальная зависимость объемного газосодержания от расходного для капилляров размером 100 и 50 мкм. В [23] это отклонение объяснено некорректной постановкой экспериментов.

В работе [23] для расходного газосодержания получено выражение

$$\beta = \frac{q_b \epsilon_L}{q_s (1 - \epsilon_L) + q_f \epsilon_L + q_b \epsilon_L} = \eta \epsilon_V \quad (10)$$

Показано, что применение формулы Арманда допустимо только при очень малых значениях капиллярного числа ( $Ca \approx 10^{-4} - 10^{-2}$ ).

Найдена связь объемной доли газа с параметрами пузырьков (относительной площадью, относительной длиной) для газожидкостного потока в капилляре [23]

$$\epsilon_V = \epsilon_A \epsilon_L \quad (11)$$

Показано, что объемное газосодержание зависит не только от расходного газосодержания, но и от капиллярного числа, числа Вебера, а также от направления течения [23].

*Потери давления при снарядном течении в капиллярах*

Активно изучается вопрос о потерях давления по длине капилляров при течении в них газожидкостной среды [15, 26, 28, 39—43], а также о местных потерях при расширении и сжатии газожидкостного потока [44]. Отметим, что потери давления определяет выбор вспомогательного оборудования, обеспечивающего перемещение газожидкостной смеси через реактор. Они характеризуют энергетические затраты и являются одним из важнейших параметров оборудования.

В качестве основных потерь давления принято считать потери на трение жидкости в снарядах, определяемое по формуле Гагена—Пуазейля для развитого ламинарного течения [15, 26, 28, 43]. Обнаружено, что потери давления при течении газожидкостной среды в капиллярах в несколько раз больше, чем в случае однофазного потока жидкости при равной скорости течения. Этот эффект объясняется разной кривизной поверхности носовой и хвостовой частей пузырька [15]. В [26] высказано предположение о существенных потерях давления при внезапном расширении жидкости из пленки с образованием жидкостного снаряда, однако эта гипотеза не подтверждена экспериментом. Учитывая, что расход жидкости в пленке на два порядка ниже скорости пузырька [21], а скорости пузырька и жидкостного снаряда одного порядка, т.е. движение жидкости в снаряде происходит (хоть и с некоторым проскальзыванием) вместе с пузырьками, можно полагать, что вклад этого вида потерь давления должен быть незначительным.

В работе [28] получено даже отрицательное значение потерь давления при малых скоростях газожидкостных сред. На наш взгляд, это может быть объяснено либо ошибками измерений, либо тем, что авторы [28] учитывали гидростатическое давление газожидкостного столба в капилляре и не учли гидростатическое давление жидкости в боковой трубке, присоединенной к датчику давления.

В работе [43] получена модификация модели Кройцера с соавт. [15], основанная на использовании формулы Брезертонна [30] для потерь давления на пузырьке с корректировкой ее с учетом формулы Ауссилуса—Керэ [31] для  $Ca \gg 0$ . Модифицированная модель [43] согласуется с опытными данными лучше модели [15]. Однако, поскольку проверка выполнена для узкого диапазона значений капиллярных чисел ( $2,3 \cdot 10^{-3} < Ca < 8,8 \cdot 10^{-3}$ ), она пока не может претендовать на общность. Кроме того, в работе [43] констатируется возможное влияние на рост потерь давления увеличения скорости пузырьков, что вызвано расширением газа по мере его приближения к свободному концу капилляра.

В работе [39] дан обзор методов моделирования потерь давления, возникающих при течении газожидко-

стой смеси в капиллярах. Простейшим из них является метод расчета потерь давления с использованием модели гомогенной среды (без проскальзывания фаз). Более передовым считается метод Локкарта—Мартинелли [45], развитый Чисхолмом и Лэрдом [46, 47], носящий формальный характер. Существенное различие расчетных и опытных данных вынуждает исследователей искать адекватные значения константы  $C$  в уравнениях модели Локкарта—Мартинелли не только для каждого типа течения, но даже для различных размеров капилляров.

Проанализирован вклад различных видов потерь давления при движении газожидкостной среды в капиллярах [24]. В дополнение к построенной ранее модели гидродинамики снарядного газожидкостного потока [21—23] разработана математическая модель, описывающая потери давления с учетом перестройки профиля скорости в жидкостных снарядах  $\Delta p_{trans}$  и потери давления, приходящиеся на образование и обновление межфазной поверхности при движении пузырьков  $\Delta p_{\Delta F}$ :

$$\Delta p_{trans} = a N_{uc} L_s \left\{ 1 + \frac{1}{2bL_s} [1 - \exp(-bL_s)] \right\} \quad (12)$$

где  $a = 8\mu U_s / R^2$ ,  $b = \nu \gamma_m^2 / U_s R^2$  — константы [24],

$$\Delta p_{\Delta F} = \frac{2R_b}{R^2} \frac{w}{U_s} \frac{L_c}{L_{uc}} \sigma \quad (13)$$

Показано, что в микроканалах касательные напряжения на поверхности пузырька существенно влияют на общие потери давления [24]. Длина пузырьков не влияет на потери давления, если пузырьки имеют одинаковую скорость движения, поскольку основные потери давления происходят на поверхности головной части пузырька [24]. Результаты моделирования удовлетворительно согласуются с опытными данными [16], причем  $\Delta p_{trans} \ll \Delta p_{\Delta F}$ . Более хорошая сходимость получена в нашей работе [25].

*Распределение фаз по каналам монолитов и устойчивость течения газожидкостной смеси в микроканалах*

Многие преимущества микрореакторов (более эффективное использование катализатора, отсутствие застойных зон и точек перегрева) существенным образом обусловлены двумя факторами: равномерностью распределения сплошной и дисперсной фаз по поперечному сечению многоканального аппарата; равномерностью распределения сплошной и дисперсной фаз по длине каналов. Очевидно, что второй фактор при условии абсолютной идентичности каналов находится под существенным влиянием первого. Поэтому для масштабирования микрореакторов необходима информация о распределении фаз по каналам (для многоканальных систем), а также по длине каналов.

К сожалению, до сих пор вопросу о распределении фаз газожидкостного потока в капиллярах уделено не-

достаточно внимания, хотя он может оказаться решающими при переходе от одноканальных лабораторных установок к многоканальным промышленным аппаратам. В частности, неравномерность распределения фаз может привести к существенному различию скоростей фаз по каналам, к большой дисперсии распределения газосодержания по каналам, а следовательно, к большому расхождению значений скорости потока в соседних каналах.

Впервые проблема гидродинамической стабильности газожидкостной смеси в монолитных реакторах (сотовой структуры) была поднята в работе [48], где отмечается, что гарантированная подача жидкости и газа по всем каналам обеспечивается при использовании распылителя типа душевой форсунки либо при создании барботированного слоя над монолитом (при газосодержании менее 0,5). В этой работе экспериментально исследовано нисходящее течение газожидкостной смеси. Теоретически показано, что неустойчивость течения возникает при разном направлении сил тяжести и силы трения потока, вызванной тормозящим действием стенок канала. Силы инерции при этом во внимание не принимались.

В работе [49] рассмотрена модель осцилляций газожидкостного потока в канале, учитывающая силы инерции и наличие расширительной емкости (гидроаккумулятора), обладающего эффектом упругости, а также упругие свойства газожидкостной смеси; потери на трение рассчитывали для движения чистой жидкости, без наличия пузырьков. В работе [50] также пренебрегали потерями давления, обусловленными наличием паровых (газовых) пузырьков, однако была учтена сжимаемость газожидкостной смеси. В [51] описаны флуктуации скорости газожидкостной смеси в микроканале, обусловленные пульсациями давления, как при формировании пузырьков при входе в микроканал, так и при их выходе.

*О проблемах, связанных с выяснением механизма формирования пузырьков при движении газожидкостной смеси в канале и с определением размеров пузырьков*

Для получения газожидкостной смеси используются самые разнообразные системы — от простейших Т- или Y-образных смесителей для одноканальных аппаратов [52] до чередующихся отрезков монолитов, повернутых друг относительно друга на 45°, и форсунок типа душевой головки [48], а также проводится индивидуальное инжектирование газа в каждый канал в случае многоканальных аппаратов. В силу разнообразия присоединения газожидкостных смесей пока еще не найдены единые закономерности формирования в смесях газовых пузырьков, позволяющие определять их размеры.

Одна из первых работ по исследованию механизма вхождения пузырька в капилляр, выполнена в 1997 году [53]. В работе [54] с помощью техники измерений микро-PIV (microscopic particle image velocimetry) было

выяснено, что образующийся в Т-образном смесителе квадратного поперечного сечения пузырек полностью блокирует канал. Показано, что до 25% жидкости медленно движется по углам канала вместе со сформировавшимся пузырьком.

*Карты режимов течения газожидкостной смеси в капиллярах*

При проектировании промышленных микрореакторов для систем жидкость—газ или жидкость—жидкость необходимо иметь четкую информацию об условиях, в которых будет реализован тот или иной режим течения реакционной смеси. Для получения такой информации строят карты режимов течения, представляющие собой координатную сетку, по оси абсцисс которой отложены, как правило, значения приведенной скорости газа, а по оси ординат — значения приведенной скорости жидкости. Несмотря на вариации свойств жидкостей и формы поперечного размера каналов, в целом границы режимов, полученные исследователями [26, 36, 55, 56], имеют вполне удовлетворительное совпадение. В работе [57] построены карты течения для системы  $\alpha$ -метилстирол—азот в канале квадратного сечения с гидравлическим радиусом 1 мм при давлениях 1, 20 и 40 бар. Хотя границы режимов с увеличением давления сдвигаются, характер их расположения остается прежним. В этой же работе исследовано влияние свойств жидкостей на границы режимов течения при различных давлениях.

Некоторые исследователи пытались построить обобщенные карты режимов течений с использованием различных гидродинамических критериев или их комбинаций. В [58] исследован переход от снарядного режима течения к пузырьковому в горизонтальных цилиндрических трубках диаметром от 0,5 до 0,7 мм и в качестве критерия перехода предложено произведение чисел Рейнольдса и Вебера:

$$\text{Re} \cdot \text{We} = \frac{U_h \cdot D \cdot \rho_l}{2\mu_l} \cdot \frac{U_h^2 \cdot D \cdot \rho_l}{2\sigma} = 2,8 \cdot 10^5 \quad (14)$$

где  $2,8 \cdot 10^5$  — значение «критического» произведения  $\rho_l$  и  $\mu_l$  для любой жидкости.

Правомомерность этого критерия была подтверждена в более поздних работах [36, 59]. Однако в [59] отмечено значительное расхождение экспериментальных результатов с данной формулой в случае квадратных горизонтальных капилляров.

Предприняты попытки учета параметров жидкости и газа при создании карт течения. В исследованиях [58] использовали систему жидкость—газ (жидкость: вода, гексан, октан, газ: гелий, азот, аргон). Для всех исследованных комбинаций жидкость—газ влияние симплексов ( $\rho_g/\rho_l$ ) и  $\mu_g/\mu_l$ ), а также свойств газов на режимы течения и границы переходов между ними оказалось незначительным.

Методы определения режима течения газожидкостных сред, основанные на информации о газосодержа-

нии, пока разработаны недостаточно [60]. Предложено строить карты течения, используя критериальные числа  $Re$  и  $Ca$ , тем самым появляется возможность распространить карты течения на различные системы жидкость—газ и каналы разной геометрии.

В заключение отметим, что несмотря на проведение многих работ, в настоящее время полной модели, позволяющей с высокой точностью предсказать режим течения в капиллярах, пока не существует.

### Массоперенос в системе газ—жидкость—твердый компонент при тейлоровском течении

В одиночном канале с активным компонентом, нанесенным на его внутренние стенки, возможны два пути массопереноса от газа в жидкость, каждый из которых состоит из двух стадий: 1) перенос вещества с цилиндрической поверхности пузырька к тонкой пленке жидкости, а от нее к поверхности твердой стенки; 2) перенос вещества с передней и задней частей пузырька в жидкостной снаряд, а из него к поверхности твердой стенки (рис.3).

Ниже приведен краткий обзор работ по исследованию массопереноса в капиллярах.

Принимая механизм параллельного массопереноса по каждому из путей и независимость каждой стадии друг от друга, в [18] предложили следующее выражение для полного объемного коэффициента массопереноса:

$$k_{tot}a_{tot} = \left( \frac{1}{k_{gf}a_{gf}} + \frac{1}{k_{fs}a_{fs}} \right)^{-1} + \left( \frac{1}{k_{gl}a_{gl}} + \frac{1}{k_{ls}a_{ls}} \right)^{-1} \quad (15)$$

Существует три подхода к решению задач массопереноса в рассматриваемых системах: аналитическое решение дифференциальных уравнений массопереноса;

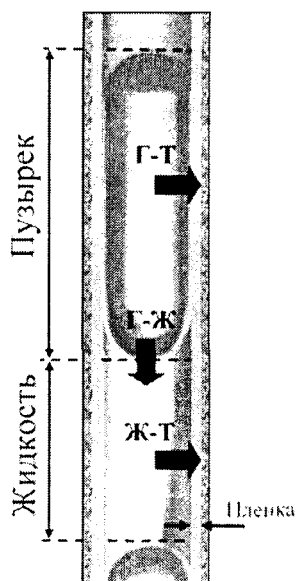


Рис. 3. Схема массопереносных потоков при снарядном режиме течения [1]

эмпирические методы исследований, основанные на использовании методов теории подобия; численное решение дифференциальных уравнений массопереноса.

Ниже приведен краткий обзор работ по исследованию массопереноса в капиллярах.

В одной из первых работ по изучению массопереноса [62] исследовали процесс растворения бензойной кислоты, нанесенной на внутренние стенки капилляров диаметром 2,350 и 3,094 мм, при протекании нисходящего газожидкостного потока (вода—воздух) со скоростью 0,079—0,13 м/с при нормальных условиях. В работе [63] на внутренней стенке капилляра иммобилизовали фермент и проводили реакцию гидролиза под действием этого фермента. По экспериментальным данным [62, 63] было получено эмпирическое уравнение:

$$Sh = 3,51 \left( \frac{d_c}{L} Pe \right)^{0,44} \left( \frac{L_s}{d_c} \right)^{-0,09} \quad (16)$$

Измерение концентрации бензойной кислоты на выходе из капилляра при течении однофазного жидкостного потока и газожидкостного потока при снарядном режиме течения [62] показало, что концентрация бензойной кислоты в жидкости при снарядном режиме течения выше в 2—3 раза, что говорит об интенсификации массопереноса при этом режиме течения.

В работе [20] исследованы отдельно две стадии массопереноса (от газа к жидкости и от жидкости к твердому телу) при нормальных условиях в восходящем газожидкостном потоке в капиллярах с внутренним диаметром 1,5, 2,5 и 3,1 мм. Абсорбция газа в жидкости исследована на примере процесса растворения метана в воде. Для исследования переноса вещества из жидкой фазы к твердому телу (например, на поверхность катализатора, нанесенного на внутреннюю поверхность капилляра) были проведены опыты по растворению бензойной кислоты, нанесенной на внутренние стенки капилляра, по которому протекает жидкость.

Авторы [20] изучали влияние длины ячейки (ячейка — пузырек газа и следующий за ним жидкостной снаряд, ее длина  $L_{UC}$  — см. рис.1), средней скорости движения фаз и объемного содержания газа на коэффициент массопереноса. По полученным опытным данным построены графики зависимости от каждой из величин, аппроксимированные соотношениями:

$$k_{gl}a_{gl} + k_{gf}a_{gf} = \frac{0,111 \cdot U_S^{1,19}}{[(1 - \epsilon_V) \cdot L_{UC}]^{0,57}} \quad (17)$$

$$k_{ls}a_{ls} + k_{fs}a_{fs} = \frac{0,069 \cdot U_S^{0,63}}{[(1 - \epsilon_V) \cdot L_{UC} - 0,105 \cdot L_{UC} \cdot \epsilon_V]^{0,44}} \quad (18)$$

Значения коэффициента массопереноса, рассчитанные по уравнениям (16) и (18), имеют существенную разницу. Это может быть связано с тем, что в формулах (17) и (18) не учтен диаметр капилляра, а эмпирические коэффициенты являются безразмерными. Последний

недостаток (безразмерность коэффициентов) пытался исключить Кройцер [64], который ввел в уравнение (17) отношение коэффициентов диффузии:

$$(k_{gl}a_{gl} + k_{gf}a_{gf})_a = (k_{gl}a_{gl} + k_{gf}a_{gf})_b \left(\frac{D_a}{D_b}\right)^n \quad (19)$$

Результаты экспериментов по абсорбции кислорода водой в реакторе с соевым катализатором [65] показали хорошее соответствие с формулой (19): при скоростях потока 0,2—0,8 м/с опытные данные легли на кривую, описываемую уравнением (19).

В работе [64] проводили реакцию гидрирования  $\alpha$ -метилстирола при температуре 323—413 К и давлении 10 бар в каналах сотового носителя, на внутренние стенки которого нанесен слой активного компонента. Полагая, что при средней скорости потока 0,2—0,8 м/с пленка жидкости, отделяющая пузырек газа от стенки капилляра, по толщине сравнима с диффузионным слоем, уравнение (15) записали в виде:

$$k_{tot}a_{tot} = k_{gs}a_{gs} + \left(\frac{1}{k_{gl}a_{gl}} + \frac{1}{k_{ls}a_{ls}}\right)^{-1} \quad (20)$$

$$k_{gs}a_{gs} = \frac{D}{\delta} \quad (21)$$

Для расчета коэффициента массоотдачи от пузырька к жидкостному снаряду использовали уравнение (19), а для случая переноса растворенного газа от жидкости к твердой поверхности (стенке капилляра) предложена формула, полученная по результатам компьютерного моделирования процесса теплопередачи по аналогии с процессом массоотдачи:

$$Sh = 20(1 + 0,003Gr^{-0,7}) \quad (22)$$

Сравнение экспериментальных результатов измерений общего коэффициента массопереноса с расчетными данными показало, что предложенная методика расчета недостаточно хорошо описывает данный процесс. Это может объясняться тем, что не учтена диффузия компонентов внутри самого катализатора к активным центрам. В более поздней работе Кройцер [3] откорректировал уравнение (22):

$$Sh = \sqrt{\alpha^2 + \frac{\beta}{Gr}} \quad (23)$$

$$\text{где } \alpha = 40 \left(1 + 0,28 \left(\frac{L_s}{d_c}\right)^{-4/3}\right), \beta = 90 + 104 \left(\frac{L_s}{d_c}\right)^{-4/3} \quad (24)$$

При моделировании процесса здесь также обратились к аналогии с процессом теплопереноса и рассматривали упрощенную геометрию снарядного режима течения — жидкостные снаряды имеют форму цилиндра.

В работе [66] экспериментально изучали массоперенос от жидкой среды к твердому телу на примере процесса растворения горизонтально расположенного медного капилляра в растворе серной кислоты и дихромата калия при нормальных условиях. Полученные экспери-

ментальные данные сравнивали с результатами численного моделирования. При моделировании этого процесса в отличие от модели Кройцера [64] решалась задача о растворении вещества (а не о теплопереносе) при расчитанном по уравнению Навье—Стокса профиле скоростей движения жидкости. Авторы [66] выделили три параметра, от которых зависит скорость массопереноса — число Пекле  $Pe$ , относительная длина жидкостного снаряда и относительная длина капилляра:

$$Sh = a_1 \cdot \tanh(a_2 Pe^{a_3} + a_4) \cdot \tanh \left[ a_5 \left(\frac{L_s}{d_c}\right)^{-a_6} + a_7 \right] \cdot \left[ 1 - \left( a_8 Pe - a_9 \left(\frac{L_s}{d_c}\right)^{a_{10}} - a_{11} \right) \cdot e^{-a_{12} \frac{L}{d_c}} \right] \quad (25)$$

где  $a_i$  — коэффициенты, найденные методом наименьших квадратов.

Зависимость выведена для условий: критерий Пекле  $Pe = 1600—400000$ ,  $L_s/d_c = 1—600$ ,  $L/d_c = 30—1000$ . Первый и второй члены уравнения (25) показывают зависимость от числа Пекле и относительной длины жидкостных снарядов, соответственно, третий член учитывает входные эффекты и в меньшей степени относительную длину капилляра.

Сравнение результативности процессов массопереноса в сплошном и снарядном режимах течения показало, что в последнем случае интенсификация массопереноса в 2—3 раза выше в зависимости от числа Пекле и относительной длины газового пузырька. При небольших длинах жидкостных снарядов интенсификация процесса массопереноса выше при  $Pe = 4000$ , чем при  $Pe = 40000$ . В случае длинных жидкостных снарядов число Пекле особого влияния не оказывает.

Изучению вопроса массопереноса при снарядном режиме течения посвящены также работы [14, 67]. В [67] рассматривается процесс массопереноса от пузырька газа к жидкости, осуществляемый в восходящем потоке при нормальных условиях в капиллярах с внутренним диаметром 1,5, 2 и 3 мм. Путем сравнения результатов моделирования и теоретической модели, предложенной авторами, оценивалось влияние скорости пузырька, длины ячейки, толщины пленки, ее длины и коэффициента диффузии на коэффициент массопереноса.

В данном случае в отличие от модели Кройцера [64] пузырьки имели форму цилиндров с двумя полусферами на концах. Для описания процесса массопереноса от полусферических частей пузырька использовали пенетрационную модель Хигби [68]:

$$k_{gl} = 2 \frac{\sqrt{2}}{\pi} \sqrt{2 \frac{DU_b}{d_c}} \quad (26)$$

Для описания массопереноса от цилиндрической части пузырька к пленке жидкости, движущейся противоположно потоку при ламинарном режиме течения, используется модель Пигфорда [68]:

$$k_{gf} = \frac{Q_f}{\pi d_c L_f} \ln \left( \frac{1}{\Delta} \right) \quad (27)$$



$$\Delta = 0,7857e^{-5,121Fo} + 0,1001e^{-3921Fo} + 0,0360e^{-105,6Fo} + 0,0181e^{-204,7Fo} + \dots \quad (28)$$

Уравнение (27) может быть записано также в следующем виде (по результатам обработки опытных данных):

$$k_{gf} = 2 \sqrt{\frac{D}{\pi l_f}} \frac{\ln(1/\Delta)}{(1-\Delta)} \text{ при } Fo < 0,1 \quad (29)$$

$$k_{gf} = 3,41 \frac{D}{\delta} \text{ при } Fo > 1 \quad (30)$$

Уравнение (29) действительно для условия кратковременного контакта фаз, уравнение (30) следует применять в остальных случаях, когда пленка жидкости насыщается газом при длительном контакте фаз.

В работе [68] моделирование проводили для условий неподвижного газожидкостного потока и движущейся со скоростью пузырька стенки капилляра, которое традиционно разбили на два этапа: получение профиля скоростей внутри жидкостного снаряда и последующее решение задачи о массопереносе газа с поверхности пузырька в жидкость.

Результаты исследования показали, что при одной и той же скорости пузырька с увеличением длины пленки жидкости возрастает коэффициент массопередачи, а изменение ее толщины никак не влияет на массоперенос. С увеличением скорости пузырька возрастает коэффициент массопередачи как к пленке, так и к жидкостному снаряду из-за уменьшения времени контакта фаз. Сравнение с данными работы [20] показало расхождение с уравнением (17) в области больших скоростей пузырька, коротких жидкостных снарядов и пузырьков газа. Отметим, что исследователи проводили опыты в диапазоне скоростей пузырька 0,2—0,8 м/с, т.е. в таком же, что и Кройцер [64], который показал, что уравнение (21) является частным случаем их теории.

В работе [14] рассматривается перенос массы от жидкости к стенке (условия и методика моделирования аналогичны тем, что применялись в работе [68]). Предложены следующие уравнения:

$$Sh = \frac{\beta}{Gz_t^\alpha} \quad (31)$$

$$\alpha = 0,61 Gz_s^{0,025} \quad (32)$$

$$\beta = \frac{0,5}{(Gz_s / \varepsilon_V)^{0,15}} \quad (33)$$

$$Gz_s = \frac{L_s D}{d_c^2 U_b} \quad (34)$$

$$Gz_t = \frac{(1 - \varepsilon_V) L D}{d_c^2 U_b} \quad (35)$$

Зависимость числа Шервуда от критерия Гретца для капилляра не изменяется при увеличении скорости пузырька и слабо зависит от объемного газосодержания. Коэффициент массопереноса от пленки жидкости к

стенке капилляра меньше, чем от жидкостного снаряда к стенке, так как при высоком газосодержании длина пузырька больше, соответственно за время контакта пленки с пузырьком достигается ее насыщение. Для коротких же жидкостных снарядов вклад в обоих случаях одинаковый.

По результатам моделирования можно заключить, что основное влияние на массоперенос оказывают три величины: объемное газосодержание, длина жидкостного снаряда и коэффициент диффузии. Сравнение уравнений (31)—(35) с опытными данными [20] и [63] показали неудовлетворительную сходимость.

Результаты экспериментов по изучению абсорбции кислорода в воде при скоростях потока 0,02—0,24 м/с, проводимые в реакторе с сотовым катализатором, привели к выводу [69], что нельзя не учитывать перенос растворенного газа от жидкостного снаряда к стенке при тейлоровском режиме течения. Судя по представленным в статье графикам, уравнения (26)—(30) и (36) довольно слабо предсказывают экспериментальные данные.

Массоперенос от пузырька газа к жидкости изучали также на примере абсорбции кислорода в воде [70]. Полученные опытные данные сравнивали с результатами расчетов по уравнениям (26)—(30). Эксперименты проводили с использованием круглых капилляров (внутренний диаметр 1, 2 и 3 мм) и с квадратным поперечным сечением (гидравлический диаметр сечения 1 и 3 мм) при восходящем потоке системы вода—воздух.

Принимая во внимание данные работы [67], авторы делают заключение, что основной вклад в массоперенос вносит перенос газа от цилиндрической части пузырька к пленке жидкости. Для инженерных расчетов коэффициента массопередачи предложена упрощенная формула:

$$k_{gf} + k_{gl} = 4,5 \sqrt{\frac{DU_G}{L_{UC}}} \frac{1}{d_c} \quad (36)$$

Формула применима при условии  $\sqrt{\frac{U_G + U_L}{L_s}} > 3$ ,

значение этого выражения менее трех показывает, что пленка жидкости насыщается. Максимальное отклонение опытных данных от расчета по уравнению (36) составляет 30%, в среднем 20%. Сравнение с результатами расчета по уравнению (17) показало значительное расхождение их с опытными данными. Причиной расхождения, как считают авторы, являются условия проведения опытов в работе [20], в которой была получена формула (17), а именно, длина ячеек составляла до 220 мм, скорость потока до 0,16 м/с. При этих условиях пленка быстро насыщается газом. В исследовании [70] длина ячеек составляла 0,005—0,06 м при скорости потока до 0,09—0,65 м/с.

В рамках исследования массопереноса в работе [71] проводили реакцию гидрирования 2-бутин-1,4-диола при нисходящем течении газожидкостного потока в одиночном керамическом капилляре (внутренний диаметр 1,69 мм), на стенки которого был нанесен катали-

затор. Изменяя скорость газа и жидкости, оценивали влияние длины жидкостного снаряда и пузырька на скорость реакции. Максимальная скорость реакции была достигнута при отношении  $L_S/d_c = 1,2$ , длина же пузырька особого влияния на скорость реакции не оказала. Варьируя длину жидкостного снаряда, добились увеличения селективности процесса от 20 до 80%. Данные результаты показывают, что перенос газовой фазы через пленку жидкости к стенке капилляра в данном случае играл второстепенную роль по сравнению с переносом пузырька к стенке капилляра через жидкостной снаряд. Для расчета коэффициента массопереноса использовали формулы (19)—(21) и уравнение (18), модифицированное по аналогии с уравнениями (17) и (19). Сравнение расчетных и экспериментальных значений показало хорошую их сходимость, когда массоперенос лимитируется газовой фазой. При лимитировании процесса концентрацией 2-бутин-1,4-диола в жидкости расчетные и опытные данные сильно разнились.

В рассмотренных работах численные решения уравнений, описывающих массоперенос при снарядном режиме течения, строились на допущении об осесимметричности потока, т.е. лишь для случая круглых капилляров. Предполагалась также заранее заданная граница раздела фаз. Кроме того, принималось, что движение совершает лишь сплошная фаза. Данные допущения преодолены в работе [18], в которой использовали метод конечных объемов. В этой работе проводили трехмерное моделирование процесса массопереноса при восходящем потоке в одиночных каналах, имеющих квадратное и треугольное поперечные сечения и гидравлический диаметр 2 мм.

Необходимо отметить, что во всех случаях пленка жидкости, отделяющая пузырек от стенки капилляра, находилась в насыщенном состоянии. Результаты моделирования показали, что короткие жидкостные снаряды предпочтительнее, когда необходимо получить высокие концентрации газа в жидкой фазе за короткий интервал времени, а длинные — когда необходимо переместить большой объем газа в жидкость. В общем случае эти данные согласуются с результатами [14, 67], правда, в этих работах пленка изначально не была насыщена. Как оказалось, массоперенос в каналах треугольной формы более эффективен, чем в каналах прямоугольной формы, так как газовый пузырек в первом случае принимает эллипсоидальное поперечное сечение, от чего площадь поверхности контакта фаз увеличивается. К сожалению, несмотря на довольно глубокий анализ поставленной проблемы, исследователи не дают какую-либо зависимость для инженерных расчетов.

Как видно из приведенного обзора статей, на данный момент отсутствует единая теория массопереноса, которая бы учитывала также протекание химической реакции и диффузию внутри многоканального катализатора. Недостаточно опытных данных, полученных с использованием одиночных каналов и многоканальных систем, в основном все эксперименты проводились при нормальных условиях и в капиллярах круглого сечения.

## Заключение

Широкому использованию мини- и микроаппаратов в промышленности, помимо ограниченного числа исследованных реакций, препятствует недостаточная изученность гидродинамики и массообмена в мини- и микроканалах. Задачей ближайших исследований является создание надежных методов расчета коэффициентов массопереноса в зависимости от геометрии мини- и микроканалов, свойств сред и скоростей движения фаз.

## ЛИТЕРАТУРА

- Hessel V., Löwe H., Müller A., Kolb G. Chemical Micro Process Engineering. Processing and Plants. Weinheim: Wiley-VCH Verlag, 2005, p. 288.
- Hessel V., Angeli P., Gavriilidis A., Löwe H. Ind. Eng. Chem. Res., 2005, v. 44, № 25, p. 9750—9769.
- Kreutzer M.T., Kapteijn F., Moulijn J.A., Heiszwolf J.J. Chem. Eng. Sci., 2005, v. 60, № 22, p. 5895—5916.
- Боровинская Е.С., Решетловский В.П. Хим. пром-сть, 2008, т. 85, № 5, с. 217—247.
- Renken A., Hessel V., Lob P. e.a. Chem. Eng. and Proc., 2007, v. 46, № 9, p. 840—845.
- P. Gao, E.V. Rebrov, J.C. Schouten e.a. MRS Fall meeting, Boston, 2009.
- He P., Haswell S.J., Fletcher P.D.I. Lab Chip., 2004, v. 4, № 1, p. 38—41.
- Бауэр Т., Шуберт М., Ланге Р., Абиев Р.Ш. Ж. прикл. химии, 2006, т. 79, № 7, с. 1047—1056.
- Roy S., Bauer T., Al-Dahhan M., Lehner P., Turek T. AIChE J., 2004, v. 50, № 11, p. 2918—2938.
- Ребров Е.В. Химическая технология, 2009, т. 10, № 10, с. 595—604.
- Edvinsson R. K., Irandoust S. AIChE J., 1996, v. 42, № 7, p. 1815—1823.
- Taha T., Cui Z. F. Chem. Eng. Sci., 2004, v. 59, № 6, p. 1181—1190.
- Taha T., Cui Z. F. Ibid., 2006, v. 61, № 2, p. 676—687.
- Van Baten, J.M., Krishna R. Ibid., 2005, v. 60, № 4, p. 1117—1126.
- Kreutzer M.T., Kapteijn F., Moulijn J.A., Kleijn C.R., Heiszwolf J.J. AIChE J., 2005, v. 51, № 9, p. 2428—2440.
- Tsoligkas A.N., Simmons M.J.H., Wood J. Chem. Eng. Sci., 2007, v. 62, № 16, p. 4365—4378.
- Wörner M., Ghidersa B., Onea A. Int. J. of Heat and Fluid Flow, 2007, v. 28, № 1, p. 83—94.
- Onea A., Wörner M., Cacuci D.G. Chem. Eng. Sci., 2009, v. 64, № 7, p. 1416—1435.
- Wörner M. 7th Int. Conf. on Multiphase Flow, Tampa, 2010.
- Bercic G., Pintar A. Chem. Eng. Sci., 1997, v. 52, № 21—22, p. 3709—3719.
- Абиев Р.Ш. Теор. основы хим. технол., 2008, т. 42, № 2, с. 115—127.
- Абиев Р.Ш. Там же, 2009, т. 43, № 3, с. 313—321.
- Абиев Р.Ш. Там же, 2010, т. 44, № 1, с. 88—103.
- Абиев Р.Ш. Там же, 2011, т. 45, № 2, с. 251—263.
- Абиев Р.Ш., Лаврецов И.В. Там же, 2011, т. 45, № 3, с. 170—177.
- Fikano T., Kariyasaki A., Ide H. 3-rd Int. Conf. on Microchannels and Minichannels, Toronto, 2005.
- Thulasidas T.C., Abraham M.A., Cerro R.L. Chem. Eng. Sci., 1995, v. 50, № 2, p. 183—199.

28. Liu H., Vandu C. O., Krishna R. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2005, v. 44, № 14, p. 4884—4897.
29. Taylor G.I. *J. Fluid Mech.*, 1961, v. 10, № 2, p. 161—165.
30. Bretherton F.P. *Ibid.*, 1961, v. 10, № 2, p. 166—188.
31. Aussillous P., Quéré D. *Phys. Fluids*, 2000, v. 15, № 10, p. 2367—2371.
32. Абиев Р.Ш. Тез. докл. межд. конф. «Математические методы в технике и технологиях», Псков, 2009.
33. Абиев Р.Ш. Тез. докл. межд. конф. «Математические методы в технике и технологиях», Саратов, 2008.
34. Thulasidas T.C., Abraham M.A., Cerro R.L. *Chem. Eng. Sci.*, 1997, v. 52, № 17, p. 2947—2962.
35. Tsoligkas A.N., Simmons M.J.H., Wood J. 6-th Int. Conf. on Multiphase Flow, Leipzig, 2007.
36. Mishima K., Hibiki T. *Int. J. Multiphase Flow*, 1996, v. 22, № 4, p. 703—712.
37. Laborie S., Cabassud C., Durand-Bowllier L., Laine J.M. *Chem. Eng. Sci.*, 1999, v. 54, № 23, p. 5723—5735.
38. Armand A.A., Treschev G.G. *Izv. Vses. Teplotekh. Inst.*, 1946, v. 15, № 1, p. 16—23.
39. Kawahara A., Chung P.M.-Y. *Int. J. Multiphase Flow*, 2002, v. 28, № 9, p. 1411—1435.
40. Chung P.M.-Y., Kawaji M. *Ibid.*, 2004, v. 30, № 7-8, p. 735—761.
41. Heiszwolf J.J., Engelvaart L.B., M.G. van den Eijnden M.T. e.a. *Chem. Eng. Sci.*, 2001, v. 56, № 3, p. 805—812.
42. Serizawa A., Feng Z., Kawara Z. *Exp. Thermal Fluid Sci.*, 2002, v. 26, № 6-7, p. 703—714.
43. Warnier M.J.F., de Croon M.H.J. M., Rebrov E.V., Schouten J.C. *Microfluidics and Nanofluidics*, 2010, v. 8, № 1, p. 33—45.
44. Chalfi T.Y., Ghiaasiaan S.M. *Int. J. Multiphase Flow*, 2008, v. 34, № 1, p. 2—12.
45. Lockhart R.W., Martinelli R.C. *Chem. Eng. Progr.*, 1949, v. 45, № 1, p. 39—48.
46. Chisholm D., Laird A.D.K. *Trans. ASME*, 1958, v. 80, № 2, p. 276—286.
47. Chisholm D. *Int. J. Heat Mass Transfer.*, 1967, v. 10, № 12, p. 1767—1778.
48. Grolman E., Edvinsson R., Stankiewicz A., Moulijn J. *Proc. of the ASME Heat Transfer Division*, 1996, v. 334, № 3, p. 171—178.
49. Reinecke N., Mewes D. *Int. J. of Multiphase Flow*, 1999, v. 25, № 6—7, p. 1373—1393.
50. Liang S.B., Ma H.B. *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, 2004, v. 31, №3, p. 365—375.
51. van Steijn V., Kreutzer M.T., Kleijn C.R. *Chem. Eng. J.*, 2007, v. 135, p. 159—165.
52. Dessimoz A.L., Cavin L., Renken A., Kiwi-Minsker L. *Chem. Eng. Sci.*, 2008, v. 63, №16, p. 4035—4044.
53. de Tezanos Pinto M., Abraham M.A., Cerro R.L. *Ibid.*, 1997, v. 52, №11, p. 1685—1700.
54. van Steijn V., Kreutzer M.T., Kleijn C.R. *Ibid.*, 2007, v. 62, № 24, p. 7505—7514.
55. Hibiki T., Mishima K. *Nuclear Eng. and Design*, 2001, v. 203, № 2-3, p. 117—131.
56. Hetsroni G., Mosyak A., Segal Z., Pogrebnyak E. *Int. J. of Multiphase Flow*, 2003, v. 29, № 3, p. 341—360.
57. Bauer T. *Experimental and theoretical investigations of monolithic reactors for three-phase catalytic reactions*. Dissertation. Technische Universität Dresden, Dresden, 2007, 167 p.
58. Suo M., Griffith P. *J. Basic Eng.*, 1964, v. 86, № 3, p. 576—582.
59. Triplett K.A., Ghiaasiaan S.M., Abdel-Khalik S.I., Sadowski D.L. *Int. J. of Multiphase Flow*, 1999, v. 25, № 3, p. 377—394.
60. Dowe D.C., Rezkallah K.S. *Int. J. of Multiphase Flow*, 1999, v. 25, №3, p. 433—457.
61. Jayawardena S.S., Balakotaiah V., Witte L. *AIChE J.*, 1997, v. 43, № 6, p. 1637—1640.
62. Hatziantoniou V., Andersson B. *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 1982, v. 21, № 4, p. 451—456.
63. Horvath C., Solomon B.A., Engasser J-M. *Ibid.*, 1973, v. 12, № 4, p. 431—439.
64. Kreutzer M.T., Du P., Heiszwolf J.J., Kapteijn F., Moulijn J.A. *Chem. Eng. Sci.*, 2001, v. 56, № 22, p. 6015—6023.
65. Heiszwolf J.J., Kreutzer M.T., van den Eijnden M.G., Kapteijn F., Moulijn J.A. *Catal. Today*, 2001, v. 69, № 1-4, p. 51.
66. Gruber R., Melin T. *Int. J. of Heat and Mass transfer*, 2003, v. 46, № 15, p. 2799—2808.
67. Van Baten, J.M., Krishna R. *Chem. Eng. Sci.*, 2004, v. 59, № 12, p. 2535—2545.
68. Шеревд Т. К., Пизфорд Р., Уилки Ч. *Массопередача. М.: Химия*, 1982, 696 с.
69. Vandu C.O., Ellenberger J., Krishna R. *Chem. Eng. and Proc.*, 2005, v. 44, № 3, p. 363—374.
70. Vandu C. O., Liu H., Krishna R. *Chem. Eng. Sci.*, 2005, v. 60, № 22, p. 6430—6437.
71. Tsoligkas A.N., Simmons M.J.H., Wood J., Frost C.G. *Catal. Today*, 2007, v. 128, № 1—2, p. 3646.