

综述与专论

微通道内气-液弹状流动及传质特性研究进展

尧超群¹, 乐军², 赵玉潮¹, 陈光文, 袁权¹

(¹中国科学院大连化学物理研究所, 辽宁 大连 116023; ²格罗宁根大学化学工程系, 荷兰 格罗宁根 9747 AG)

摘要: 气-液弹状流, 又称 Taylor 流, 是一种以长气泡和液弹交替形式流动的流动形态。微通道内气-液弹状流因其气泡与液弹尺寸分布均一、停留时间分布窄、径向混合强等优点, 是一种适于强化气-液反应的理想流型。本文首先介绍了微通道内气泡的生成机理、气泡和液弹长度, 以及气泡生成阶段的传质特征。其次系统综述了主通道中弹状流动及传质过程的研究进展, 包括气泡形状与液膜厚度、液弹内循环和泄漏流特征、气-液传质系数的测量与预测, 以及物理与化学吸收过程中的传质特性等方面内容。最后阐述了当前研究的不足并展望了气-液弹状流的研究方向。

关键词: 多相流; 微通道; 微反应器; 气泡; 传质

DOI: 10.11949/j.issn.0438-1157.20150820

中图分类号: TK 124

文献标志码: A

文章编号: 0438—1157 (2015) 08—2759—08

Review on flow and mass transfer characteristics of gas-liquid slug flow in microchannels

YAO Chaoqun¹, YUE Jun², ZHAO Yuchao¹, CHEN Guangwen¹, YUAN Quan¹

(¹Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, Liaoning, China; ²Department of Chemical Engineering, University of Groningen, 9747 AG Groningen, The Netherlands)

Abstract: Gas-liquid slug flow (also termed as Taylor flow) is a flow pattern characterized by the alternate movement of elongated bubbles and liquid slugs. Gas-liquid slug flow operation in microchannels has been found important implications in the enhancement of gas-liquid reactions due to its advantages such as easy control, uniform bubble and slug size, narrowed residence time distribution as well as enhanced radial mixing. This review presents the basic conceptions and recent research progress on flow and mass transfer characteristics during the gas-liquid slug flow in microchannels. The gas bubble formation mechanisms, the corresponding bubble and liquid lengths, and mass transfer during bubble formation are summarized. For regular slug flow in the main section of microchannels, several important aspects are addressed including bubble cross-sectional shape and liquid film profile, internal liquid recirculation and leakage flow through the gutters, gas-liquid mass transfer coefficients and coupling phenomena between flow and mass transfer in physical and chemical absorption processes. Finally, an outlook is given for future research directions in this field.

Key words: multiphase flow; microchannel; microreactor; bubble; mass transfer

2015-06-03 收到初稿, 2015-06-18 收到修改稿。

联系人: 陈光文。第一作者: 尧超群 (1989—), 男, 博士研究生。

基金项目: 国家自然科学基金项目 (21225627, 21376234)。

Received date: 2015-06-03.

Corresponding author: Prof. CHEN Guangwen, gwchen@dicp.ac.cn

Foundation item: supported by the National Natural Science Foundation of China (21225627, 21376234).

引 言

化学工业过程中所涉及的氧化、加氢、氯化、氟化、吸收等多为气-液两相体系,已有研究表明微通道反应器在处理气-液反应过程具有较大优势^[1-2]。微通道尺寸的缩小使得气-液两相流动状况易于控制,分散相尺寸均一,气-液相界面积可高达 $10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$,与传统反应器相比提高 1~3 个量级^[3];另一方面,微反应器的强传热能力,可有效控制强放热反应的温度分布,避免或缓解反应热点的出现,从而拓宽操作温度区间^[4-5]。相同反应条件下,微通道内优异的传质传热性能可有效改善反应进程和提高反应选择性。因此,开展微反应器内的气-液两相流动、传质、传热及反应等特性的研究具有重要意义。微通道反应器内气-液两相流动的流型一般有泡状流、弹状流、弹状-环状流、环状流、搅拌流等^[3]。其中气-液弹状流以操作范围宽、气泡/液弹尺寸均一、流动易调控、径向混合程度高,轴向返混低等优势受到广泛关注。气-液弹状流又称泰勒流(Taylor flow),其基本特征为:气相作为分散相以气泡形式存在,其长度通常大于通道宽度;液相作为连续相以液弹形式存在,相邻液弹通过气泡与通道壁面间的液膜连接;气泡和液弹交替出现,液弹内的内循环使径向混合程度增加,进一步提高了传质性能。气-液弹状流是一种适于强化气-液反应的理想流型。

本文综述了微通道内弹状流动与传质规律的研究进展,重点介绍气泡长度、气泡形状和液膜厚度等重要特征,阐释微通道内气泡的生成机制、流动特性对传质的影响。最后对弹状流研究的发展方向进行了展望。

1 气泡生成过程及传质

1.1 气泡生成机理

气泡的断裂与形成是其在惯性力、剪切力和压降等作用下克服表面张力束缚的结果。基于受力分析,气泡生成机理可分为挤压、剪切和过渡模式。如图 1 (a) 所示,挤压模式下,气泡头部几乎占据整个通道,其断裂的主要驱动力为因通道受阻而剧增的上游液体压力,此模式下剪切力作用甚微^[6];剪切模式下,气泡形成过程中仅占据部分通道 [图 1 (b)],此时剪切力和惯性力为控制因素;介于挤压和剪切模式间的为过渡模式。通常,毛细管

数 $Ca < 0.01$ 时呈挤压模式, Ca 较高时 (> 0.01) 多呈剪切模式^[6]。气泡生成机理还受其他因素影响,如 Yao 等^[7-8]发现在 Y 型通道中,挤压模式向剪切模式的转变仅与液速相关:系统压力升高,气泡周围泄漏流增加使生成过程由过渡模式向挤压模式转变。

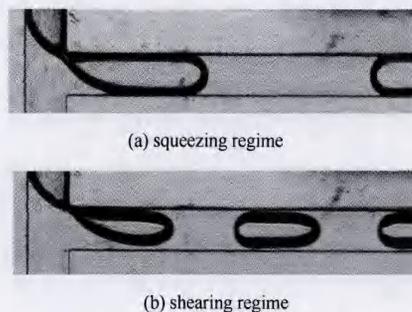


图 1 微通道内气泡生成模式

Fig. 1 Bubble formation in a microchannel

数值模拟和实验研究已经证实,气泡生成过程中通道入口处液相压力及气泡速度均呈现周期性变化,其变化规律有助于揭示气泡的生成机理^[9]。Yao 等^[8]发现主通道中气泡速度和入口处新生气泡头部移动速率的波动步调一致,表明气泡生成过程对主通道中流动产生显著影响。挤压模式下,气泡速度经历 3 个阶段:填充阶段,气相进入主通道时,气泡头部在液相剪切力和惯性力作用下速度急剧增加;随后气泡受力处于短暂平衡阶段,气泡以较大速度移动;最后坍塌阶段,流动阻力增加使气泡速度快速下降至初始水平。这一过程中,压力波动幅度可达数十至数百帕^[9],与微通道内表面张力大小 ($10^2 \sim 10^3 \text{ Pa}$)^[10]相当。剪切模式下,由于气泡并不完全堵塞通道,气泡速度和连续相压力波动较缓和^[8-9]。与挤压和剪切模式不同,中间过渡模式比较复杂。虽然周期性波动仍然存在,但是因较强的剪应力作用增加了 Plateau-Rayleigh 不稳定,波动幅度较大而且稳定性变差。

1.2 气泡和液弹长度

气泡与液弹长度受通道结构、流体性质和流动状况等因素影响,不同生成模式下的气泡和液弹长度呈不同特征。挤压模式下气泡长度预测较简单,而剪切模式和中间过渡模式比较复杂。Garstecki 等^[6]将挤压模式下侧 T 型微通道入口结构处气泡生成过程分为两个阶段。首先是填充阶段,气泡头部穿透液相直至接近壁面,该阶段气泡伸出的长度与通道宽度 W 相近。其次为挤压阶段,气泡颈部在上

游液体的挤压下坍塌直至断裂。分析比较作用于气泡的各种力,认为气泡断裂的主要推动力是气泡上下游的压差。因此,挤压阶段中气泡的长度决定于连续相挤压气泡颈部的时间 ($A_{ch}W_{neck}/Q_C$) 和气泡的生长速度 (Q_G/A_{ch})。故气泡总长度为这两阶段贡献之和

$$L_B = W + \tau_{pinchoff} \mu_{growth} = W + W_{neck} Q_G / Q_C \quad (1)$$

式(1)表明,挤压模式下,对于特定的微通道入口结构,气泡长度仅与气液流量比相关。由于 Garstecki 模型忽略了惯性力、剪切力以及泄漏流等的影响,仅极少数情况符合该模型,大多数情况下流体性质/流动条件对气泡长度有显著影响^[11-13]。如惯性作用可促进气泡断裂,固定气-液流量比,增大流速气泡长度降低^[7]。van Steijn 等^[14]认为气泡周围的液体泄漏流会延长气泡断裂时间,气泡更长。众多研究者根据实际情况提出了修正的 Garstecki 关联式^[11]。Yao 等^[7]在方程(1)的基础上引入韦伯数 (We) 成功地预测了惯性作用下气泡的长度。修正的关联式拓宽了 Garstecki 模型的适用范围,也可应用于过渡甚至剪切模式。但因各研究者的实验条件及微通道结构差异,各种预测式间的吻合程度还较差。

另一类为包含 Re 、 Ca 、 We 、 ε 等量纲一参数的纯经验关联式^[15-17]。Qian 等^[16]通过 CFD 考察了流体性质、通道结构等参数的影响,提出了关联式(2)和式(3)以预测气泡和液弹长度

$$L_B / W = 1.637 \varepsilon_G^{0.107} \varepsilon_L^{-1.05} Re^{-0.075} Ca^{-0.0687} \quad (2)$$

$$L_S / W = 1.637 \varepsilon_G^{-0.893} \varepsilon_L^{-0.05} Re^{-0.075} Ca^{-0.0687} \quad (3)$$

这类关联式的共同特点是相分率的影响比较显著^[17], Pohorecki 等^[15]提出的“切换”机制较好地解释了这一现象。该机制假设在气泡和液弹交替生成的过程中,每一相断裂的时间等于另一相填充整个通道宽度所需要的时间。气泡体积等于气泡断裂时间 ($\propto W/j_L$) 与气泡速度 ($\propto j_{TP}$) 之乘积。由于液膜很薄,因此有 $L_B/W \propto \varepsilon_L^{-1}$, 即气泡长度与液相分率成反比关系。同样,液弹长度则与气相分率成反比。该类关联式不限于挤压模式,其应用范围更广。

1.3 气泡生成阶段传质特征

通道入口对传质过程有重要影响^[3, 18], 主要表现为两方面:影响气泡生成过程中传质和通过气泡/液弹长度影响主通道中传质。气泡和液弹长度对传质的影响已有很多文献报道。例如, Fries 等^[18]分析了不同入口结构中产生的气泡和液弹长度,认为优化入口设计可强化传质 1.6 倍。而有关气泡生成阶

段的相间传质研究较少,定量的传质数据测量还很缺乏。

Tan 等^[19]通过比较气泡长度,测定出气泡生成阶段 CO_2 的吸收量为总体吸收量的 30%~40%。季喜燕^[20]发现 CO_2 气泡生成时,液相中 CO_2 浓度随时间升高,证明在气泡生成阶段有较强的传质发生。Ganapathy 等^[21]利用 CFD 研究了入口阶段对总体吸收特性的影响。当停留时间较短时(约 15 ms),考虑了入口阶段传质作用时的吸收量比不考虑时低 8%~16%。由于气泡生成过程中相界面面积经历从最小到最大的过程,而不考虑此阶段传质时相界面面积一直保持最大量。因此, Ganapathy 等^[21]认为气泡生成阶段的总体积传质系数比主通道中常规弹状流小。

Yao 等^[22]建立气泡溶解过程的物理模型,外推出入口处的气体吸收量。分析 CO_2 在乙醇溶液中的吸收行为,发现入口处气体吸收量和入口气量的比值 ϕ 与最大传质速率 $k_L a C^* t$ 成正比,如图 2 所示。在短气泡生成时间内(2~14 ms),液相中溶质浓度可以忽略,故此关系成立。Yao 等^[23]同时考察了不同压力下入口段的吸收情况,发现吸收量 ϕ 随压力的增加而增大。研究表明 ϕ 值约为 2%~10%,远小于 Tan 等^[19]的结果。原因可能是 Tan 等^[19]的实验中气泡生成时间长(200~400 ms)且体系为快速化学吸收之故。Ganapathy 等^[21]研究了低 NaOH 和 CO_2 浓度体系下,5~10 ms 的生成周期内入口段的吸收仅为总吸收量的 1.5%~3.3%,与 Yao 等^[23]的结果相近。目前有关气泡生成阶段传质行为的研究非常少,相关信息匮乏限制了微反应器的应用与发展。

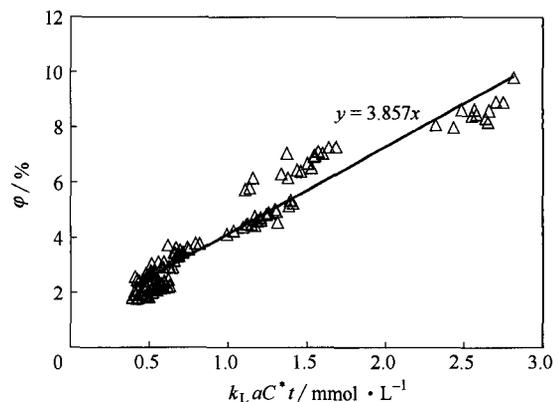


图 2 入口吸收分率 ϕ 与最大传质速率间关系^[22]

Fig.2 Inlet absorption fraction ϕ as a function of maximum mass transport rate^[22]

2 主通道中弹状流动与传质特征

2.1 气泡形状及液膜厚度

气泡周围的液膜对传质传热过程有重要影响。圆形通道中，气泡截面形状和周围液膜分布呈轴对称状。研究表明液膜厚度可表达为毛细管数 Ca 的函数^[24-25]。Aussilous 等^[25]将圆管内液膜分布机制分为 3 类：黏性-毛细、黏性-惯性和黏性边界层机制。黏性-毛细机制描述无惯性作用时，液膜厚度仅取决于 Ca 。此时液膜厚度符合以下关系

$$\delta / r = 1.34Ca^{2/3} / (1 + 3.35Ca^{2/3}) \quad (4)$$

式(4)在较宽的 Ca 范围内 ($10^{-4} \sim 1.4$) 都可使用。他们还发现惯性作用会使液膜厚度增大，此时液膜分布属于黏性-惯性机制，液膜厚度和 Ca 、 We 的关系可定性表达为

$$\delta / r \propto Ca^{2/3} / (1 + Ca^{2/3} - We) \quad (5)$$

上述两种机制的前提都是边界层得到充分发展。当边界层没有充分发展时，液膜厚度还受到通道尺寸等因素的影响，十分复杂。此处不做介绍，可参阅文献^[25]。

方形通道中，液膜分布是非轴对称的。当液体黏度增大， Ca 数增加时，气泡截面形状由非轴对称向轴对称转变^[26]。这个转变过程存在一个临界 Ca 值^[26-27]。Kolb 等^[26]实验研究了微通道中空气置换硅油过程，发现临界 Ca 值约为 0.1；Thulasidas 等^[27]则发现弹状流下该临界值为 0.04。矩形通道中临界 Ca 值还受到通道深宽比的影响。模拟结果表明，当深宽比大于 0.5 时，增大 Ca 数气泡仍然会转变成轴对称；当深宽比小于 0.5 时，气泡只能呈椭圆状^[28]。目前，针对矩形通道内液膜分布以及气泡形状的报道也很少，仍需深入研究。

方形通道内液膜分布用壁面处和直角处液膜厚度 δ_{wall} 和 δ_{corner} 来描述。与圆形通道中类似，这两处液膜厚度都随 Ca 增加而增大。当 $Ca < 0.02$ 时，壁面处液膜厚度 δ_{wall} 几乎为一定值^[26]。Kreutzer 等^[24]提出了在较大 Ca 数范围内具有优良预测性能的 δ_{corner} 关联式

$$\delta_{corner} / D_H = 0.357 - 0.25 \exp(-2.25Ca^{0.445}) \quad (6)$$

需指出的是，方程(6)仅适用于惯性作用很小的情况。Han 等^[29]分别测量了圆形和方形微通道内液膜厚度，并提出了惯性作用下液膜厚度关联式。Yao 等^[7]通过气-液弯曲界面对光反射的原理研究了矩形通道内气泡的形状和液膜分布，发现惯性对液膜的增厚作用更加明显。如图 3 所示，在相同的 Ca

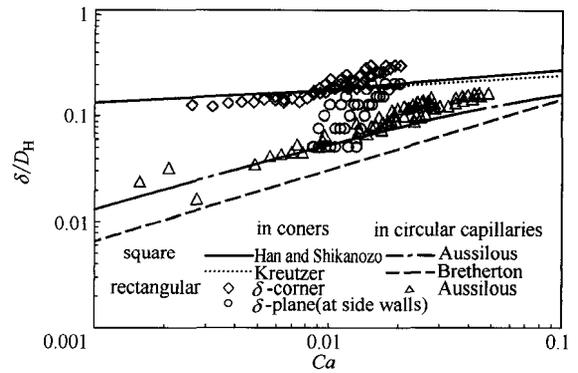


图 3 液膜厚度随 Ca 数变化图

Fig. 3 Film thickness vs capillary number

数下，矩形通道内因惯性效应强，液膜厚度比圆形和方形通道中均大幅升高。故在很窄 Ca 范围内，增大气相或者液相流速都会使气泡变得尖锐，液膜厚度急剧增加。

2.2 液弹内流体流动特性

类似于单相的 Hagen-Poiseuille 流动，液弹中心处液体流速也是最大的，且大于气泡运动速度。以气泡为参考系，液弹中心附近的流体流至气泡处被迫折返，形成了液弹中的内循环流动^[30]。内循环流动现象最早由 Taylor^[31]预测提出，目前已经被实验和模拟等证实。Taylor^[31]分析认为只有当 $U_B/j_{TP} < 2$ 时，内循环才存在；当 $U_B/j_{TP} > 2$ 时，液体则完全绕过气泡通过与壁面间的缝隙流过。当 Ca 数增加时，液膜变厚， U_B/j_{TP} 相应增大，循环涡半径变小，涡中心也向通道中心移动。此过程中，气泡变得纤细，头部也更加尖锐。当 Ca 数增加到一定值 ($0.5 \sim 0.89$)^[27]，内循环消失，完全绕流发生。

直通道中液弹内两个共生内循环涡流是镜面对称的。而在弯曲通道中，离心力导致流体在通道截面内产生涡流 (Dean flow)。水平面的内循环和竖直面的狄恩流相互作用，使得液弹内的流动形态变得更加复杂、紊乱^[32]，甚至使共生涡流分裂成两个或者更多的小涡。Fries 等^[33-34]提出用旋度和涡强度来描述内循环的特征。研究表明减小弯道曲率半径有助于增强涡强度，增加气速或液速则会使强涡流面积增大，而不改变旋度和涡强度峰值。Waelchli 等^[35]研究了流体性质对内循环特征的影响，发现甘油溶液和去离子水的流动形态比较接近而与乙醇的流动形态相差较大，故而认为内循环受表面张力的影响较黏性的影响大。不过也有可能是由于其实验中甘油溶液 [10% (质量分数)] 与去离子水黏度差异很小造成的。Zaloha 等^[30]考察了 90° 折角对液弹内

流动的影响, 通过测量横跨折角方向的液体速度分布, 有效地辨别了折角处死体积的大小。

在矩形或方形通道中, 由于表面张力作用, 气泡与壁面间的角落中存在较大空间, 部分液体经此空间绕流过气泡, 形成泄漏流, 进而影响气泡的形成及流动行为。通过追踪气-液界面移动速率, van Steijn 等^[14]估算泄漏流流量约占入口液体流量的 10%~24%。Yao 等^[8]研究发现泄漏流随系统压力增加而增加; 通过双光路照明法观测到悬浮颗粒在气泡与壁面间的液膜内流动, 证实了泄漏流; 研究发现液膜内颗粒速度最高可达气泡速度的 10 倍, 表明泄漏流对气泡断裂机制有重要的影响。由于泄漏流难于观测和定量, 目前, 针对泄漏流的研究还很少。

泄漏流与内循环之间的传递机制对于调控传质传热有重要的影响。图 4 中示出了泄漏流与内循环相互作用的示意图, 直观展示了泄漏流和液弹内流体交换规律。泄漏流的驱动力源自气泡两端的 Laplace 压差, 气泡尾端附近液体被卷吸入气泡与通道间液膜内, 然后从气泡前端喷出。此过程中, 液体速度可高达气泡速度的数倍。液体从气泡前端喷出后与内循环流汇合, 在循环流作用下向通道中心运动。经此, 相邻液弹间发生物质交换, 增强轴向混合。

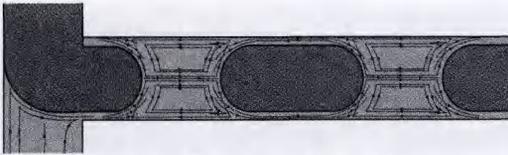


图 4 泄漏流和内循环示意图

Fig. 4 Recirculation and leakage flow

2.3 传质系数

微反应器的一个重要优点就是具有很高的传质传热速率^[3]。Yue 等^[3]发现微反应器中液相体积传质系数 $k_L a$ 比传统气液接触器高 1~2 个数量级。微反应器中高 $k_L a$ 主要源自于其极高的比表面积, 而 k_L 与其他接触器相比并无明显提高。弹状流下气泡和液相间的传质主要包括两部分^[36-37]: (1) 气泡两端向液弹主体传质, 受循环速度影响; (2) 气泡主体向气泡周围液膜传质, 受气泡与液膜的接触时间影响。综合起来, 总体传质能力与许多因素如气泡/液弹长度, 气泡速度等有关。弯角和内构件可强化液相内的混合, 增加相间传质速率。

根据弹状流的传质特点, 传质系数可用式 (7)

计算^[37]

$$k_L a = k_{Lc} a_{cap} + k_{Lf} a_f \quad (7)$$

式 (7) 在弹状流传质的研究中被广泛应用^[37-38]。van Baten 等^[37] 根据渗透理论分别计算出上述两部分传质系数并得到最终的计算公式

$$k_L a = 2 \frac{\sqrt{2}}{\pi} \sqrt{\frac{DU_B}{D_h}} \frac{4}{L_{uc}} + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{DU_B}{\epsilon_G L_{uc}}} \frac{4\epsilon_G}{D_h} \quad (8)$$

可见, $k_L a$ 和通道尺寸、单元长度成反比关系, 与气泡速度成正比关系。这是因为减小通道尺寸和单元长度都有利于增加比表面积, 同时也缩短了传质距离。气泡主体和气泡两端的传质在不同的条件下对总传质系数的贡献各不相同, 故上式可根据实际情况进行简化。根据 j_{TP} 、 L_S 和 t_F 可判别液膜传质时间^[39], 当液膜部分的传质贡献占主导作用时, 式 (8) 中右边第一项可忽略; 而当气泡长度很长时, 液膜被饱和, 传质系数只受液弹长度影响^[40]。

基于式 (7) 的模型符合传质过程特征, 但需要气泡长度、速度等与流动相关的信息, 不便于实际应用。据此, 很多研究者提出纯经验关联式来预测传质系数^[41]。其中 Yue 等^[3]提出的预测关联式得到广泛应用

$$Sh_L a D_h = 0.084 Re_G^{0.213} Re_L^{0.937} Sc_L^{0.5} \quad (9)$$

该经验式只关联入口流动条件, 无需了解具体的流动状况。Sobieszuk 等^[36]比较了不同关联式对他们实验值的预测性能, 发现 Yue 等^[3, 42]的关联式预测效果较好, 而 Vandu 等^[39]和 Bercic 等^[40]的预测效果差。Yao 等^[22-23]分别提出了适用于不同流体性质和系统压力下的预测关联式, 结果接近 Sobieszuk 等^[36]和 Yao 等^[22-23]的关联式预测值。可见, 纯经验关联式使用简单, 在相近的操作条件下能获得较好的预测效果。

2.4 流动过程中的传质现象

传质与流动耦合程度高, 二者互相影响。传质对流动过程产生的影响可通过气泡长度变化来反映。Sun 等^[17]研究了 CO_2 气泡在物理溶剂中的溶解规律, 发现溶解过程可以分为两个阶段: 快速溶解阶段 ($t < 1$ ms), 气泡减小速度和时间 t 成正比; 慢速溶解阶段 ($t > 1$ ms), 气泡减小速度和 $t^{1/2}$ 成正比。此过程中, 液弹的长度基本保持不变^[22]。Yao 等^[22]发现气泡的最终溶解量和液弹长度成正比。这验证了 Zaloha 等^[30]的推测, 即单个液弹的传质传热容量只和液弹长度有关, 而不受总流速的影响。Yao 等^[22]提出单元传质模型关联气泡尺寸和传质系数, 可预测气泡溶解过程。如图 5 所示, 单元传质模型假定:

(1) 传质单元中气相和液相分别完全混合；(2) 气相和液相间传质仅在单元内进行；(3) 单元与单元间液相无交换。故在单元内，气相溶质质量守恒有

$$\frac{dV_B}{dt} = \frac{dV_B}{dx} U_B = -k_L a (C^* - C) V_L \frac{RT}{P} \quad (10)$$

式中， V_L 和 V_B 分别代表单元内液相和气泡的体积。而液相中溶质通道的浓度分布符合

$$C^* - C = (C^* - C_0) e^{-\frac{x}{L} k_L a} \quad (11)$$

联立式 (10) 和式 (11) 可得

$$L_B = L_{B0} + \frac{C^* - C_0}{U_B A_B} V_L \frac{RT}{P} j_L \left(e^{\frac{x}{L} k_L a} - 1 \right) \quad (12)$$

即气泡长度在通道中呈指数衰减

$$L_B = m_1 + m_2 e^{-m_3 x} \quad (13)$$

式中， m_1 为液相饱和后的气泡长度； m_2 为液相饱和和溶解量对应的气泡长度； $m_1 + m_2$ 则为气泡初始长度。式 (13) 可用于在线测量弹状流传质系数而无需消除端效应，便于应用。弹状流的传质现象在很多领域具有应用前景，如 CO_2 封存与利用、酸性饮料配制、溶解度测量等。

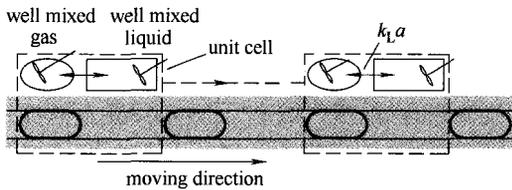


图 5 单元传质模型示意图

Fig. 5 Unit cell model for mass transfer

内循环引起的流场不均匀性导致液弹内对流扩散速度存在差异，引起溶质浓度分布不均匀^[38]。通过染色法、 μ -LIF 等浓度表征方法，可观察溶质在内循环作用下的分散过程，进而在线研究混合、反应等特征。弹状流下气-液传质与流动的高度耦合使得过程的传质特征更加复杂，实验难以测定详细信息。数值模拟是研究传质过程的重要方法。Onca 等^[43]分别研究了含有易溶和难溶气体的气泡周围溶质浓度分布情况。当易溶气体向液相中传质时，液相中浓度梯度比较大，而气泡内浓度分布比较均匀。此时两相间传质的阻力主要位于液相侧。难溶气体的情况正好相反，两相间的传质阻力主要位于气体侧。Shao 等^[44]考察了物理与快速化学吸收过程对吸收效率和液相利用率的影响，发现发生快速化学反应时，吸收被有效地强化，但是增大内循环速度对传质的促进作用不明显。

3 结论及展望

本文详细介绍了微通道中气-液弹状流的流动以及传质特征。目前学术界对弹状流的基本特性已有较清晰的认识。因其优异的流动及传质特性，弹状流在微纳材料合成、新型反应过程和分析工具开发等方面的应用中取得了良好效果。但是，完全调控弹状流依然是具有挑战性的课题，仍需深入研究。

(1) 目前关于气泡生成过程的研究大多集中于挤压模式，惯性作用不明显。当惯性作用增强时，流体性质对气泡生成过程有明显影响。在过渡模式和剪切模式下，过程复杂性大幅增加导致气泡长度难以预测，所提出的关联式普适性不强。

(2) 刻蚀法等加工技术易加工出矩形或近矩形截面，故工业应用中矩形通道的用处更广。另外，在矩形通道的宽面处集成换热通道更有利于换热。相对于圆形和方形通道中气泡形状和液膜分布的广泛研究，针对矩形通道的还非常少。

(3) 液弹内循环图案以二维居多，缺乏三维流动信息。随着表征手段发展或计算能力提高，应该致力于获取更加复杂结构的通道内二维或三维内循环信息。

(4) 矩形或方形通道中，气泡周围的泄漏流不能忽略。泄漏流对弹状流的流动及传质有重要的影响，但其过程机理和传递特性还缺乏了解。

(5) 微通道内气-液过程传质系数比常规反应器中高 1~3 个数量级。弹状流的传质过程包括气泡两端向液弹传递和气泡主体向液膜传递两部分。结合渗透传质理论，可得到预测传质系数模型。但总体上，对传质的了解仍有待提高，如流体性质和内循环等对传质作用规律尚不完善；对气泡生成阶段传质特征的了解还非常匮乏。

(6) 化学工业中，气液反应一般都是在加压、非常温的条件下进行。目前，文献中报道的研究结果绝大部分是常温常压下的，用于指导反应器设计可能会带来严重的偏差，有必要开展近工业条件下的基础研究。

符 号 说 明

- A —— 面积
- C —— 浓度
- Ca —— 毛细管数, $\mu U / \sigma$
- D —— 扩散系数
- D_H —— 水力直径
- j —— 表观速度

k_{LC} —— 气泡端部液相传质系数
 k_{LF} —— 液膜处液相传质系数
 R —— 摩尔气体常数
 Re —— Reynolds 数, $D_H U \rho / \mu$
 Sh —— Sherwood 数, $k_L D_H / D$
 Sc —— Schmidt 数, $\mu / \rho D$
 U —— 速度
 V —— 体积
 W —— 宽度
 We —— 韦伯数, $D_H \rho U^2 / \sigma$
 x —— 距通道入口处距离
 ε —— 相分率
 δ —— 液膜厚度

下角标

B —— 气泡
 F —— 液膜
 G —— 气体
 L —— 液体
 S —— 液弹
 TP —— 两相

References

- Inoue T, Schmidt M A, Jensen K F. Microfabricated multiphase reactors for the direct synthesis of hydrogen peroxide from hydrogen and oxygen [J]. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2007, **46**(4): 1153-1160.
- Zhao Y C, Yao C Q, Chen G W, Yuan Q. Highly efficient synthesis of cyclic carbonate with CO₂ catalyzed by ionic liquid in a microreactor [J]. *Green Chem.*, 2013, **15**(2): 446-452.
- Yue J, Chen G W, Yuan Q, Luo L A, Gonthier Y. Hydrodynamics and mass transfer characteristics in gas-liquid flow through a rectangular microchannel [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2007, **62**(7): 2096-2108.
- de Mas N, Gunther A, Schmidt M A, Jensen K F. Microfabricated multiphase reactors for the selective direct fluorination of aromatics [J]. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2003, **42**(4): 698-710.
- Hessel V, Kralisch D, Kockmann N, Noel T, Wang Q. Novel process windows for enabling, accelerating, and uplifting flow chemistry [J]. *ChemSusChem*, 2013, **6**(5): 746-789.
- Garstecki P, Fuerstman M J, Stone H A, Whitesides G M. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction-scaling and mechanism of break-up [J]. *Lab Chip*, 2006, **6**(3): 437-446.
- Yao C Q, Zhao Y C, Ye C B, Dang M H, Dong Z Y, Chen G W. Characteristics of slug flow with inertial effects in a rectangular microchannel [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2013, **95**: 246-256.
- Yao C Q, Dong Z Y, Zhao Y C, Chen G W. The effect of system pressure on gas-liquid slug flow in a microchannel [J]. *AIChE Journal*, 2014, **60**: 1132-1142.
- Xu K, Tostado C P, Xu J H, Lu Y C, Luo G S. Direct measurement of the differential pressure during drop formation in a co-flow microfluidic device [J]. *Lab Chip*, 2014, **14**(7): 1357-1366.
- Dietrich N, Poncin S, Midoux N, Li H Z. Bubble formation dynamics in various flow-focusing microdevices [J]. *Langmuir*, 2008, **24**: 13904-13911.
- Dang M H, Yue J, Chen G W, Yuan Q. Formation characteristics of Taylor bubbles in a microchannel with a converging shape mixing junction [J]. *Chem. Eng. J.*, 2013, **223**: 99-109.
- Abadie T, Aubin J, Legendre D, Xuereb C. Hydrodynamics of gas-liquid Taylor flow in rectangular microchannels [J]. *Microfluidics Nanofluidics*, 2012, **12**(14): 355-369.
- Fu T T, Ma Y G, Funfschilling D, Zhu C Y, Li Z H. Squeezing-to-dripping transition for bubble formation in a microfluidic T-junction [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2010, **65**(12): 3739-3748.
- van Steijn V, Kreutzer M T, Kleijn C R. μ -PIV study of the formation of segmented flow in microfluidic T-junctions [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2007, **62**(24): 7505-7514.
- Pohorecki R, Kula K. A simple mechanism of bubble and slug formation in Taylor flow in microchannels [J]. *Chem. Eng. Res. Des.*, 2008, **86**(9): 997-1001.
- Qian D, Lawal A. Numerical study on gas and liquid slugs for Taylor flow in a T-junction microchannel [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2006, **61**(23): 7609-7625.
- Sun R, Cubaud T. Dissolution of carbon dioxide bubbles and microfluidic multiphase flows [J]. *Lab Chip*, 2011, **11**(17): 2924-2928.
- Fries D M, von Rohr R P. Impact of inlet design on mass transfer in gas-liquid rectangular microchannels [J]. *Microfluids Nanofluids*, 2009, **6**(1): 27-35.
- Tan J, Lu Y C, Xu J H, Luo G S. Mass transfer characteristic in the formation stage of gas-liquid segmented flow in microchannel [J]. *Chem. Eng. J.*, 2012, **185/186**: 314-320.
- Ji Xiyan (季喜燕). Research on the gas-liquid flow and mass transfer in microchannels [D]. Tianjin: Tianjin University, 2011.
- Ganapathy H, Al-Hajri E, Ohadi M. Mass transfer characteristics of gas-liquid absorption during Taylor flow in mini/microchannel reactors [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2013, **101**: 69-80.
- Yao C Q, Dong Z Y, Zhao Y C, Chen G W. An online method to measure mass transfer of slug flow in a microchannel [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2014, **112**: 15-24.
- Yao C Q, Dong Z Y, Zhao Y C, Chen G W. Gas-liquid flow and mass transfer in a microchannel under elevated pressures [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2015, **123**: 137-145.
- Kreutzer M T, Kapteijn F, Moulijn J A, Heiszwolf J J. Multiphase monolith reactors: chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2005, **60**(22): 5895-5916.
- Aussillous P, Quéré D. Quick deposition of a fluid on the wall of a tube [J]. *Phys. Fluids*, 2000, **12**(10): 2367-2371.
- Kolb W B, Cerro R L. Coating the inside of a capillary of square cross-section [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 1991, **46**(9): 2181-2195.
- Thulasidas T C, Abraham M A, Cerro R L. Bubble-train flow in capillaries of circular and square cross-section [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 1995, **50**(2): 183-199.
- Hazel A L, Heil M. The steady propagation of a semi-infinite bubble into a tube of elliptical or rectangular cross-section [J]. *J. Fluid Mech.*, 2002, **470**: 91-114.
- Han Y, Shikazono N. Measurement of liquid film thickness in micro square channel [J]. *Int. J. Multiphase Flow*, 2009, **35**(10): 896-903.
- Zaloha P, Kristal J, Jiricny V, Völkel, Xuereb C, Aubin J. Characteristics of liquid slugs in gas-liquid Taylor flow in

- microchannels [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2012, **68**(1): 640-649.
- [31] Taylor G. Deposition of a viscous fluid on the wall of a tube [J]. *J Fluid Mech.*, 1961, **10**(2): 161-165.
- [32] Günther A, Khan S A, Thalmann M, Trachsel F, Jensen K F. Transport and reaction in microscale segmented gas-liquid flow [J]. *Miniatur. Chem. Biol. Bioeng.*, 2004, **4**: 278-286.
- [33] Fries D, Waelchli S, von Rohr P R. Gas-liquid two-phase flow in meandering microchannels [J]. *Chem. Eng. J.*, 2008, **135**: S37-S45.
- [34] Fries D M, von Rohr P R. Liquid mixing in gas-liquid two-phase flow by meandering microchannels [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2009, **64**(6): 1326-1335.
- [35] Waelchli S, von Rohr P R. Two-phase flow characteristics in gas-liquid microreactors [J]. *Int. J. Multiphase Flow*, 2006, **32**(7): 791-806.
- [36] Sobieszuk P, Pohorecki R, Cygański P, Grzelka J. Determination of the interfacial area and mass transfer coefficients in the Taylor gas-liquid flow in a microchannel [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2011, **66**(23): 6048-6056.
- [37] van Baten J M, Krishna R. CFD simulations of mass transfer from Taylor bubbles rising in circular capillaries [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2004, **59**(12): 2535-2545.
- [38] Dietrich N, Loubière K, Jimenez M, Hébrard G, Gourdon C. A new direct technique for visualizing and measuring gas-liquid mass transfer around bubbles moving in a straight millimetric square channel [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2013, **100**: 172-182.
- [39] Vandu C O, Liu H, Krishna R. Mass transfer from Taylor bubbles rising in single capillaries [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2005, **60**(22): 6430-6437.
- [40] Bercic G, Pintar A. The role of gas bubbles and liquid slug lengths on mass transport in the Taylor flow through capillaries [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 1997, **52**: 3709-3719.
- [41] Sobieszuk P, Aubin J, Pohorecki R. Hydrodynamics and mass transfer in gas-liquid flows in microreactors [J]. *Chem. Eng. Technol.*, 2012, **35**(8): 1346-1358.
- [42] Yue J, Luo L, Gonthier Y, Chen G W, Yuan Q. An experimental study of air-water Taylor flow and mass transfer inside square microchannels [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2009, **64**(16): 3697-3708.
- [43] Onea A, Wörner M, Cacuci D G. A qualitative computational study of mass transfer in upward bubble train flow through square and rectangular mini-channels [J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2009, **64**(7): 1416-1435.
- [44] Shao N, Gavrilidis A, Angeli P. Mass transfer during Taylor flow in microchannels with and without chemical reaction [J]. *Chem. Eng. J.*, 2010, **160**(3): 873-881.