

VYUŽITÍ MATLAB IMAGE PROCESSING TOOLBOXU PRO VYHODNOCENÍ VIZUALIZACE DVOUFÁZOVÉHO PROUDĚNÍ V MIKROREAKTORU

P. Zálaha, J. Kříšťál, V. Jiříčný

Institute of Chemical Process Fundamentals of the ASCR, v.v.i.

Souhrn

Příspěvek prezentuje využití MATLABU, respektive Image processing toolboxu, při studiu dvoufázového toku kapalina-plyn v elektrochemickém mikroreaktoru s tenkou šterbinou.

Při návrhu a optimalizaci průmyslového elektrochemického mikroreaktoru je nutné znát hydrodynamické charakteristiky vznikajícího dvoufázového toku při různých operačních podmínkách (průtok kapalné fáze, proudová hustota přivedená na elektrody, celkový tlak v aparatuře, drsnost elektrod, ...). Plyn, uvolňující se při elektrochemické reakci na katodě, podstatně ovlivňuje průběh, a tím i selektivitu a výtěžek elektrochemické alkoxylace probíhající na anodě.

Pro studium hydrodynamiky toku v elektrochemickém mikroreaktoru byla navržena vizualizační cela, ve které byl vznikající režim toku zaznamenáván digitálním fotoaparátem. Z pořízených fotografií byl nejprve kvalitativně vyhodnocen režim toku, a poté byly fotografie pomocí funkcí MATLAB Image processing toolboxu postupně upravovány s cílem kvantitativně vyhodnotit charakteristiky jednotlivých vznikajících bublin. Pro charakterizaci dvoufázového toku byla následně vypočtena rozdělení velikosti bublin a zádrže plynu.

Výsledky ukazují, že v elektrochemickém mikrokanálu s malým poměrem tloušťky a šířky vznikají čtyři režimy toku, a to proudění bez bublin, dispergované bubliny, bublinový tok a vířivý tok. Prezentované tokové mapy ukazují, za jakých podmínek dochází ke vzniku jednotlivých režimů toku. Výsledky rozdělení velikosti bublin potvrdily očekávané trendy, tedy že se zvyšujícím se průtokem kapalné fáze se bubliny zmenšují a s rostoucí proudovou hustotou se bubliny zvětšují. Při použití elektrody o menší drsnosti vznikají větší bubliny. Při zvýšeném tlaku v aparatuře vznikají menší bubliny.

1. Úvod

V posledních letech jsou na chemické technologie kladeny stále rostoucí nároky. Jde hlavně o zkrácení výrobního procesu, zvýšení bezpečnosti práce, omezení dopadů na životní prostředí, vyšší kvalitu produktů, možnost rychlého přechodu na nový produkt nebo zlepšení kontroly lokálních hodnot provozních parametrů. Především ve vyspělých zemích, z důvodů přísnějších legislativních opatření, se situace bez nových přístupů a radikálních změn stává neudržitelnou. Tradiční výrobci čelí stále vyšší konkurenci ze zemí, kde nejsou takové legislativní nároky především na ochranu životního prostředí a bezpečnost práce.

Jedním z možných řešení je ve vybraných procesech využití strukturovaného přístupu s využitím mikroaparátů. Jejich využívání v chemickém průmyslu je ale pouze na počátku, dostupné technologie pro výrobu mikroaparátů byly zvládnuty relativně nedávno, a i přes intenzivní výzkum v této oblasti není zatím chování těchto systémů dostatečně popsáno. Možné aplikace mikrozařízení mohou být velmi různorodé, například mikromísíče, mikrostrukturované tepelné výměníky, mikropumpy a podobně. Pro důkladné popsání mikroreaktoru je nutné získat informace o reakční kinetice, přenosu tepla a hmoty a hydrodynamice v mikroreaktoru [1-3].

Elektrochemický mikroreaktor je navrhován s cílem dosáhnout co nejvyšší selektivity a konverze reakce už při jednom průchodu reakční směsí, čímž je možné se vyhnout recirkulaci a sníží se náklady na následnou separaci a čištění produktu.

Důležitou vlastností elektrochemického mikroreaktoru je změna charakteru toku přímo v reaktoru, kdy do reaktoru je přiváděna pouze jedna fáze – kapalná reakční směs, na elektrodě pak

vznikají elektrochemickou reakcí bubliny plynu a tak na výstupu je již dvoufázový tok kapalina-
plyn. Bubliny plynu také výrazně ovlivňují vlastní elektrochemickou reakci. Jelikož plyn je
nevodivý, v případě příliš velkých bublin dochází k blokování aktivního povrchu elektrod a v okolí
bublin se mění rozložení proudových hustot. Z těchto důvodů je nutné znát režim toku, rozdělení
velikosti bublin a zadrž plyn, aby bylo možné elektrochemický reaktor správně navrhnout a
provozovat. Ke studiu parametrů toku lze s výhodou využít technik vizualizace toku, přičemž
výsledky jsou získány pomocí metod zpracování obrazu, kde lze s výhodou využít MATLAB Image
processing toolbox.

Tato experimentální studie navazuje na práci [4], přičemž rozšiřuje poznatky především o
chování systému za zvýšeného tlaku a v případě použití elektrody o jiné definované drsnosti.
Zvýšení tlaku v systému je jednou z možností jak zmenšit velikost bublin, a tak vhodně upravit
režim toku v reaktoru. Drsnost elektrod také výrazně ovlivňuje velikost bublin a chování toku, je
proto nutné najít vhodnou povrchovou úpravu elektrod pro dosažení co nejlepšího průběhu
elektrochemické reakce.

1.1 Dvoufázový tok v mikrokanálu

Mikrokanálem se rozumí zařízení s charakteristickými rozměry menšími než 0,1 mm [3],
přičemž tato hranice není pevně dána a souvisí spíše se změnami chování toku oproti standardním
zařízením [2].

Studiu dvoufázového toku v mikrokanálech je v posledních letech věnována velká pozornost,
především pro velký potenciál v mnoha průmyslově významných chemických reakcích [5].

Poměr povrchu k objemu v mikroreaktorech může dosahovat hodnot až $50000 \text{ m}^2/\text{m}^3$, s čehož
poté vyplývá hodnota koeficientu přenosu hmoty v řádu 10 s^{-1} [3]. Oproti konvenčním reaktorům
jsou tyto hodnoty velkým posunem a mikroreaktory tak umožňují provádět i reakce citlivé na
rychlost promíchání reaktantů, nebo rychlé exotermické reakce (oxidace, hydrogenace, nitrace,
sulfonace) [6].

Dvoufázový tok může v mikroreaktoru vznikat dvěma základními způsoby, a to přivedením
obou fází na vstup reaktoru a zprostředkování jejich interakce, nebo vznikem jedné z fází přímo
v reaktoru (chemickou reakcí [7], elektrochemickou reakcí [4] nebo varem či kondenzací [8]).

Pokud se obě fáze do reaktoru přivádí, jsou možné dva přístupy ke zprostředkování kontaktu
fází [5, 9]. Prvním přístupem je mikroreaktor s kontinuálními fázemi, kdy obě fáze spojitě prochází
přes celý mikroreaktor a na konci bývají odváděny odděleně. Geometrie takového mikroreaktoru
pak musí zajistit stabilní a dobře definované mezifázové rozhraní. Příkladem takového přístupu je
reaktor s padajícím filmem [10] nebo mikroreaktor s niklovou sítí [11]. Nevýhodou tohoto přístupu
je nutnost precizního řízení provozních parametrů, aby nedocházelo k porušení stabilního
mezifázového rozhraní a mísení fází.

Druhým přístupem jsou reaktory s dispergovanými fázemi, na jejichž počátku jsou obě fáze
smíseny za vzniku dynamického mezifázového rozhraní a následně procházejí různě tvarovaným
mikrokanálem. Charakter hydrodynamiky takového systému poté závisí na mnoha parametrech,
především ale na poměru toku kapalné a plynné fáze.

Výkon dvoufázového mikroreaktoru do značné míry závisí na režimu toku, vytvořeném při
kontaktu obou fází. Režim toku udává kvalitu promísení obou fází, které může být vyjádřeno
mezifázovou plochou, zadrž plyn, rozdělením velikosti bublin, tlakovou ztrátou, tloušťkou
kapalinového filmu, ale i kvalitou promíchávání v rámci každé z fází. Chování toku je ovlivněno i
geometrií reaktoru a mísičů, fyzikálně-chemickými vlastnostmi reaktantů, ale i například smáčivostí
stěn reaktoru. Detailní znalosti všech těchto parametrů jsou nutné pro navrhování nových
mikroreaktorů.

1.2 Elektrochemie v mikroreaktoru

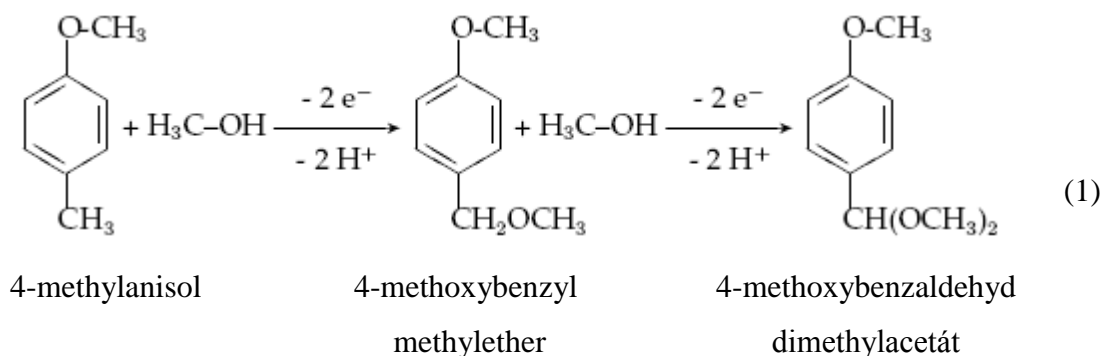
K mikrostrukturovanému přístupu k návrhu elektrochemických mikroreaktorů se podvědomě
směřovalo již od šedesátých let minulého století především v elektroorganické syntéze. Bylo to
dáno velmi malou vodivostí používaných elektrolytů, a tedy snahou minimalizovat ohmické ztráty
na elektrolyzáru. Příkladem takto usprádaného elektrolyzáru je cela s tenkou šterbinou využívaná

k elektrochemické alkoxylic 4-methylanisolu firmou BASF [12]. V tomto systému se mezielektrodová vzdálenost pohybuje v rozmezí 0,5–1 mm, takže tato cela se už dá téměř považovat za mikrostrukturovanou.

V posledních letech se společně s celou oblastí mikroreaktorů upírá pozornost i na elektrochemické mikroreaktory. Intenzivní výzkum tak probíhá opět především v oblasti elektroorganické syntézy, kde se hledají nové reakční systémy vhodné zvláště pro elektrochemické mikroreaktory. Tyto nové reakční systémy, nazývané spárované či spojené, se vyznačují využíváním obou elektrodových reakcí k získání výsledného produktu, čímž se podstatně snižují nároky na následnou separaci a čištění produktu. Příkladem může být syntéza adiponitrilu z akrylonitrilu a vodíku [13].

Pro reakční systémy, kde takovýto přístup není možný, ale mikroreaktory přináší také výhody plynoucí z lepšího přenosu hmoty a lepší kontroly procesu. Pro již zmíněnou elektrochemickou alkoxylic 4-methylanisolu tak byl vyvinut elektrochemický mikroreaktor se segmentovanou anodou [14]. Na rozdíl od elektrochemického mikroreaktoru s tenkou štěrbinou firmy BASF zde reakční směs necirkuluje, ale využívá se pouze jednoho průchodu reakční směsí mikroreaktorem. Už při jednom průchodu reakční směsí je ovšem dosaženo dostatečné konverze a selektivity reakce.

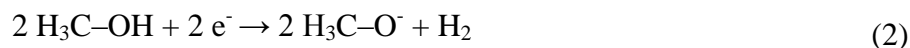
V této práci je jako modelová reakce využívána právě elektrochemická alkoxylic 4-methylanisolu, jejíž zjednodušené reakční schéma ukazují rovnice (1) a (2). Anodická reakce je popsána rovnicí



Rovnice (1) ale ukazuje jen značně zjednodušenou sekvenci reakčních kroků, přičemž skutečný reakční mechanismus je mnohem složitější. Celý reakční mechanismus a také kinetický model této reakce je možné nalézt v [15].

Produkt této elektrochemické reakce, 4-methoxybenzaldehyd dimethylacetát, se následně hydrolyzuje na 4-methoxybenzaldehyd, který je cennou surovinou pro další výroby, například ve farmaceutickém nebo kosmetickém průmyslu.

Jako protireakce na katodě v tomto systému probíhá elektrochemická redukce methanolu podle rovnice



Produktem této reakce je plynný vodík ve formě bublin. Přítomnost bublin vodíku je v systému nevyhnutelná, protože redukce methanolu je jedinou možnou protireakcí. Přítomné bubliny vodíku tak ovlivňují i anodickou reakci a tím výkon mikroreaktoru. Vliv přítomnosti bublin na výkon mikroreaktoru byl pomocí metod matematického modelování zkoumán v [16], experimentálně bylo poté chování bublin zkoumáno v [17]. Výsledky těchto studií ukazují, že k ovlivnění elektrochemické reakce dochází na základě dvou efektů. Prvním je blokování aktivního povrchu elektrody nevodivou bublinou, kdy negativně ovlivňují výkon mikroreaktoru bubliny o větším průměru než je mezielektrodová vzdálenost. Druhým efektem je narušení lokálního rozložení proudových hustot, které může vést až k vedlejším reakcím a tím ke snížení selektivity. Nicméně modelování ukázalo, že bubliny menší než 50% mezielektrodové vzdálenosti nezpůsobují významné porušení rozložení lokálních proudových hustot.

Při navrhování a optimalizaci elektrochemického mikroreaktoru je tedy nutné znát velikosti bublin vznikajících při elektrochemické reakci a vést elektrochemický mikroreaktor za takových

podmínek, aby vznikající bubliny co nejméně ovlivňovaly elektrochemickou reakci. Je tedy třeba dosáhnout nejlépe optimálního tokového režimu dispergovaných bublin [4].

1.3 Vizualizace toku a zpracování obrazu

Vizualizace toku se používá ke studiu mnoha typů systémů, například ke studiu jednofázových toků [2], studiu vzniku bublin v mikrokanálu [7], nebo i při studiu bublin v míchaném reaktoru [18] či v potravinářském průmyslu [19]. Vizualizace se dá použít i ke zkoumání jednotlivých chemických či biologických vzorků [20].

Vizualizace toku s použitím fotoaparátu nebo kamery je metoda použitelná především pro vícefázové systémy. V toku plyn-kapalina mohou být pořízeny snímky bublin a ty poté vyhodnocovány pomocí technik zpracování obrazu. Tak mohou být získány informace o režimu toku, zádrži plynu, rozložení velikosti bublin apod.

Velkou výhodou vizualizace s pomocí fotoaparátu nebo kamery je neinvazivnost této metody, pro vícefázový tok nejsou ani potřeba žádné značkovače. Další výhodou je také relativně snadná dostupnost potřebného vybavení, jelikož i běžné komerčně dostupné fotoaparáty poskytují dostatečné rozlišení snímku. Nevýhodou je oproti tomu nutnost používat průhledné experimentální zařízení.

Zpracování obrazu může být definováno jako sekvence kroků, ve kterých je výchozí obraz upravován s cílem získat z něj dané informace. Výraz digitální zpracování obrazů vyjadřuje to, že výchozí snímek je v digitální formě a ke zpracování byl využit počítač [21].

Zpracování obrazu může být rozděleno na několik základních operací, přičemž výsledkem každé je obraz nějak upravený, či obraz s nějakou změnou vlastností. Mezi tyto operace se řadí pořízení obrazu, zkvalitnění obrazu, obnova obrazu, úprava barev, vlnové transformace, komprese, morfologické operace, segmentace, popis a rozpoznání objektů. [21].

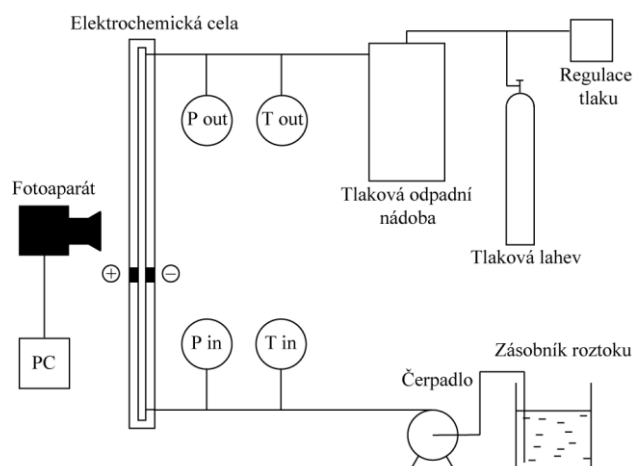
Při celém procesu zpracování obrazů se vytváří informační databáze, kam jsou ukládány výsledky každého kroku zpracování. V informační databázi mohou být uloženy také další potřebné informace, jako datum a čas pořízení obrazu, informace o snímacím zařízení a podmínkách pořízení obrazu apod.

Pro zpracování obrazů se využívá specializovaný software, přičemž takový je komerčně nabízen od mnoha výrobců (Adobe Photoshop, NI Vision Builder, Lucia, MATLAB Image processing toolbox apod.). Funkce těchto programů jsou obdobné, hlavní rozdíly jsou v ovládní a v možnostech nastavení parametrů jednotlivých funkcí, záleží tedy na uživateli, který program pro danou aplikaci zvolí. Pro účely zpracování obrazů dvoufázového toku v této práci byly využívány programy Adobe Photoshop CS2 a MATLAB Image processing toolbox.

2. Experimentální část

2.1 Popis aparatury

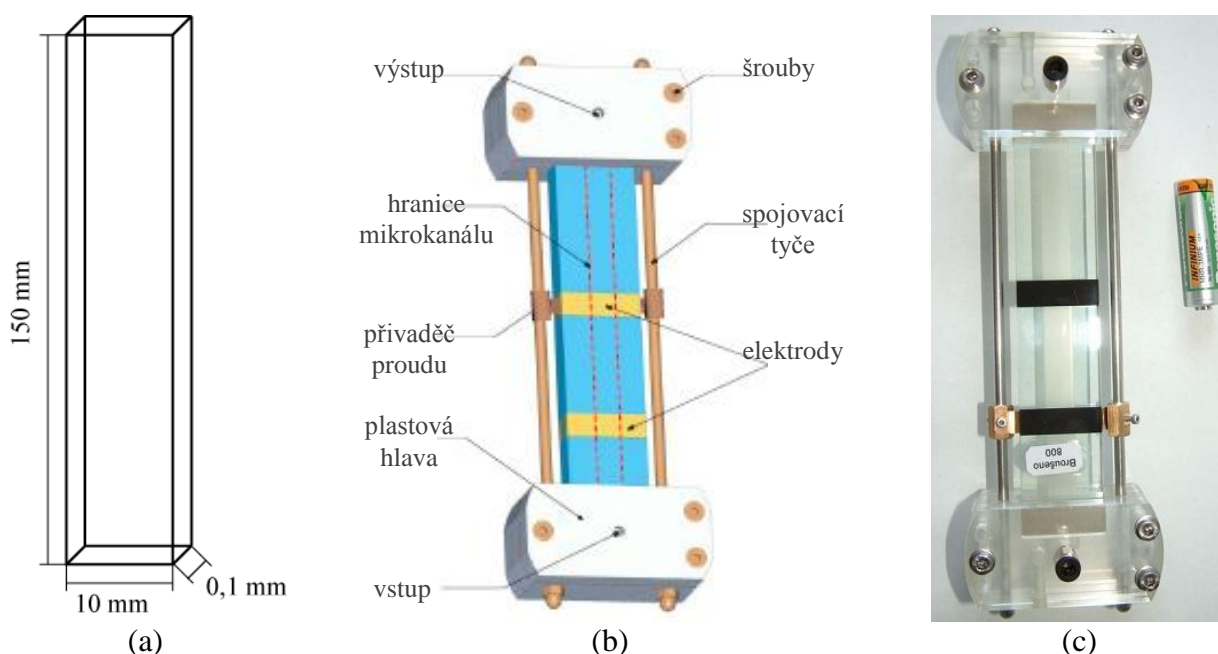
Na Obr. 1 je schéma použité experimentální aparatury. Reakční roztok byl čerpán ze zásobníku HPLC pístovým čerpadlem Alpha 100, firmy ECOM spol. s r.o. do elektrochemické vizualizační cely a poté byl odváděn do tlakové odpadní nádoby. Zdrojem stejnosměrného proudu byl digitální zdroj Motech 1022. Celou aparaturu bylo možno natlakovat pomocí tlakové lahve a udržovat konstantní tlak pomocí automatického regulátoru tlaku Bronkhorst. Dvoufázový tok byl vizualizován pomocí digitálního fotoaparátu Nikon D70 s protisvětlem Schott KL2500 LCD, pořízené fotografie byly následně uloženy do PC a dále zpracovávány. Data z tlakových (Omega PX26) a teplotních (termočlánek typu K) senzorů byla taktéž ukládána do PC pomocí systému Labview.



Obr. 1: Experimentální aparatura

2.2 Elektrochemická vizualizační cela

Použitá elektrochemická vizualizační cela navržená našim pracovištěm byla vyrobena ve Vývojových optických dílnách UFP AV ČR. Schéma mikrokanálu, schéma cely a fotografie cely jsou na Obr. 2. Cela je vyrobena ze skla a obsahuje 2 páry elektrod ze skelného uhlíku. Skládá se ze dvou plátů, ve kterých jsou vlepeny elektrody. V jednom z plátů byl vybroušen kanál o hloubce 0,1 mm a šířce 10 mm a oba pláty byly slepeny k sobě. Nátok a výtok reakční směsi je řešen pomocí dvou plastových hlav, které jsou z obou stran na mikrokanál nasazeny a umožňují připojení standardizovaných hadiček. Mikrokanál byl pro měření orientován vertikálně, jeho délka (L) je 150 mm, šířka (W) 10 mm a tloušťka (D), tedy i mezielektrodová vzdálenost, je 0,1 mm, aktivní délka elektrod je 9 mm.



Obr. 2: Schéma mikrokanálu (a), schéma elektrochemické vizualizační cely (b), fotografie elektrochemické vizualizační cely (c)

Jedním z cílů práce bylo posouzení vlivu broušení elektrod na režim toku. Elektrody ze skelného uhlíku použité v elektrochemické vizualizační cele byly broušeny pomocí dvou brusných past se stupněm 800 a 1000, přičemž vyšší stupeň znamená jemnější povrch elektrody. Můžeme předpokládat, že tvorba bublin bude převládat na vyvýšeninách a ostrých hranách povrchu kvůli lokálnímu zvýšení proudové hustoty. Rozdíl mezi elektrochemickou aktivitou vyvýšenin a prohlubní je závislý na drsnosti elektrod, se zvyšující se drsností je vyšší.

2.3 Podmínky měření

Při výběru podmínek měření byly voleny analogické podmínky měření jako v [4], přičemž takové podmínky odpovídají vhodným podmínkám pro průběh elektrochemické reakce. Proběhly dvě hlavní série měření, jedna pro zvýšený tlak v systému, kdy na výstupu z elektrochemické vizualizační cely byl nastaven tlak 2 bar, při použití katody broušené brusnou pastou 800. Druhá série měření probíhala s aparaturou provozovanou při atmosférickém tlaku, ale s použitím katody broušené brusnou pastou 1000. Výsledky byly následně porovnány s výsledky převzatými z [4], kdy měření probíhalo za atmosférického tlaku a s použitím katody broušené brusnou pastou 800. Mikrokanál byl orientován vertikálně a tok kapaliny a plynu byl souprůdný.

Při měření se měnil průtok kapaliny a proud vložený na elektrody. Souhrn těchto parametrů a příslušných mimovrstvových rychlostí plynu je v Tab. 1.

Tab. 1: Používané podmínky měření, převody mezi mimovrstvovými rychlostmi, objemovým průtokem kapaliny a vložené proudové hustoty

J [$A \cdot m^{-2}$]	100	200	400	800	1500	3000	5500	7000
u_G [$mm \cdot s^{-1}$], 1 bar	1,6	2,7	4,8	9,3	17	34	63	81
u_G [$mm \cdot s^{-1}$], 2 bar	0,8	1,4	2,4	4,7	8,5	17	32	41
Q_L [$ml \cdot min^{-1}$]	0,2	0,5	1,0	2,5	5,0	10	25	
u_L [$mm \cdot s^{-1}$]	3,3	8,3	17	42	83	170	420	

Všechny experimenty byly prováděny za laboratorní teploty. Jako kapalná fáze byla při všech měřeních použita reakční směs elektrochemické alkoxylace, tedy roztok 4-methylanisolu v methanolu, přičemž methanol sloužil jako rozpouštědlo i reakční činidlo. Pro zvýšení vodivosti byl jako pomocný elektrolyt použit chloristan sodný. Použitý roztok tedy obsahoval 4-methylanisol v koncentraci 0,01 M a chloristan sodný o koncentraci 0,4 M. Vodivost tohoto roztoku byla 17,4 mS/cm [4]. Plynnou fází byl pouze vodík vznikající při měření elektrochemickou reakcí na katodě. Výpočet ukázal, že při teplotě měření se v protékající kapalině může rozpustit přibližně 0,005 % vodíku vznikajícího na katodě pro nejvyšší použitý průtok kapaliny a nejnižší použitou proudovou hustotu. Tato hodnota je zanedbatelná.

Tab. 2: Vybrané vlastnosti fází

	ρ	μ	σ
	$kg \cdot m^{-3}$	$Pa \cdot s$	$N \cdot m^{-1}$
vodík	0,0899	$8,35 \times 10^{-6}$	—
methanol	792	$5,84 \times 10^{-4}$	0,0218
reakční směs	834	$7,34 \times 10^{-4}$	0,0232

Tab. 2 shrnuje vlastnosti použitých fází, přičemž pro porovnání uvádí i čistý methanol. Zobrazované veličiny jsou hustota při atmosférickém tlaku, dynamická viskozita a povrchové napětí. Hodnoty jsou převzaty z [4].

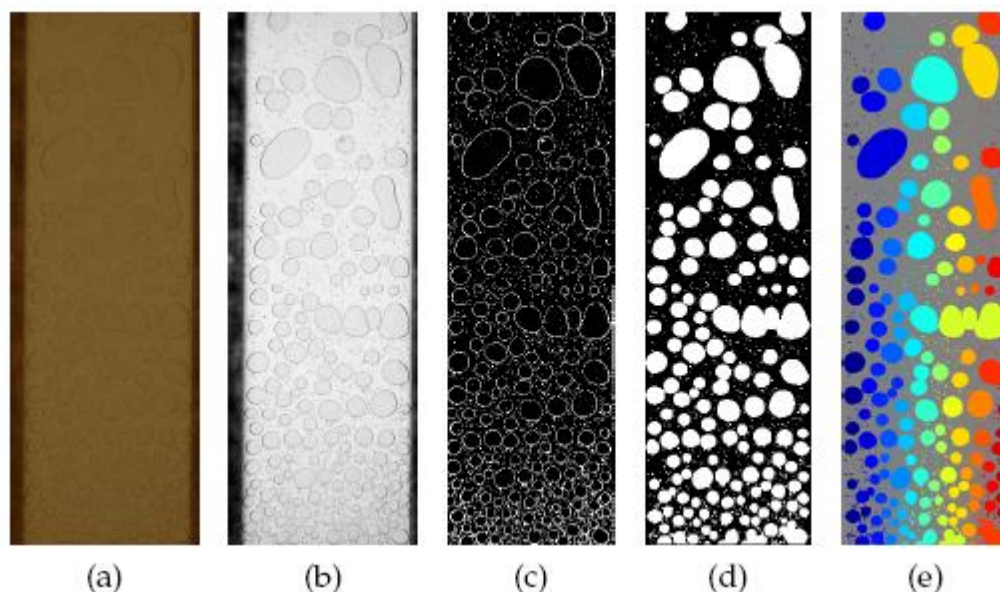
Jelikož v průběhu měření docházelo jen k malým změnám teploty, hodnoty hustoty a dynamické viskozity byly v průběhu měření považovány za konstantní pro obě fáze.

2.4 Zpracování obrazu

Pro potřeby charakterizace dvoufázového toku v této práci bylo využito šest následných kroků zpracování obrazu, a to pořízení obrazu, úprava barev, obnova obrazu, morfologické operace, segmentace obrazu a popis objektů.

Obrazy byly zpracovávány s použitím programů Adobe Photoshop CS2 (APS) a Matlab Image processing toolbox (MLIPT). Použití APS se omezovalo na základní operace oříznutí obrazu, převedení do intenzitního barevného modelu (stupně šedi) a úpravy histogramu. Další postup už byl programován v MIPT, podrobné vysvětlení k jednotlivým krokům je možné najít v [21]. Zdrojové kódy zde vzhledem k jejich rozsáhlosti nebudou uvedeny.

Při každém měření bylo pořízeno reprezentativní množství fotografií dvoufázového toku. Pro měření, u kterých bylo vyhodnocováno rozdělení velikosti bublin, to znamenalo minimálně 300 fotografií. Fotografie dvoufázového toku zachycovaly část mikrokanálu přímo nad elektrodovým párem, přičemž snímaná délka mikrokanálu byla cca 3 cm. Příklad fotografie získané přímo z fotoaparátu (pouze oříznuté) je na Obr. 3a.



Obr. 3: Kroky zpracování obrazu: původní obraz pořízený fotoaparátem (a), intenzitní obraz (b), černobílý obraz (c), filtrovaný obraz s vyplněnými bublinami (d), identifikované bubliny (e)

Fotoaparát ukládá fotografie v barevném modelu RGB, který je ovšem v tomto případě zbytečný. Bez ztráty obrazové informace lze fotografii převést do intenzitního barevného modelu (stupně šedi), který má podstatně nižší výpočetní nároky při dalším zpracování. V takto upraveném obrazu už jsou jasně patrné tmavé kontury bublin na světlejším pozadí. Velmi tmavé jsou stěny mikrokanálu. Příklad obrazu převedeného do stupňů šedi je na Obr. 3b.

Pořízené obrazy nebyly dostatečně kontrastní, proto byl kontrast upraven pomocí vyrovnání histogramu. Po této úpravě obraz využívá všech stupňů šedi a jeví se tak jako kontrastnější. Přestože použité protisvětlo se vlastnostmi velmi blížilo homogennímu, byla homogenita pozadí obrazu vylepšena pomocí takzvané „bottom-hat“ transformace. Použití této transformace zároveň invertovalo barvy v obraze, takže kontury bublin byly nyní světlé a pozadí, představující okolní kapalinu a vnitřní oblast bublin, bylo tmavé.

Dalším krokem úpravy obrazu bylo jeho převedení na černobílý barevný model. Pro převedení bylo potřeba vhodně zvolit práh určující, které pixely budou převedeny na bílé a které na černé. Použité prahy pro jednotlivé série měření se pohybovaly mezi hodnotami 0,08 a 0,09, přičemž 1,0 znamená v šedotónovém zobrazení bílý pixel a 0,0 černý pixel. Výsledný binární obraz obsahoval bílé kontury bublin, stěny mikrokanálu a šum na černém pozadí. Příklad takového obrazu je na Obr. 3c.

Morfologické operace byly na černobílém obraze nutné pro správné rozpoznání bublin. Jako první byly z obrazu odříznuty stěny mikrokanálu, poté už celý obraz představoval vyhodnocovanou oblast. Jako další krok byly upraveny kontury bublin, každý černý pixel, který měl dva bílé nespojené sousedy, byl změněn na bílý. Tím došlo k uzavření obvodů bublin. Takto uzavřené bubliny byly následně celé vyplněny bílými pixely.

Bubliny o menší ploše než 25 pixelů (tedy asi $0,003 \text{ mm}^2$) bylo už velmi obtížné rozeznat od šumu, proto byly všechny objekty na obrazu menší než 25 pixelů odstraněny s využitím operace otevření obrazu. Poslední morfologickou operací bylo odstranění zbytků stěn mikrokanálů, přičemž ale byly zachovány bubliny dotýkající se okraje mikrokanálu. Po těchto krocích už obraz obsahoval pouze bílé bubliny na černém pozadí, příklad je na Obr. 3d.

Všechny bubliny byly identifikovány jako spojený bílý objekt na černém pozadí a každé bylo přiděleno vlastní číslo, které se stalo hodnotou každého pixelu dané bubliny. Hranice bublin byly definovány jako křivky procházející středy okrajových pixelů. Výsledný obraz s použitím barevné mapy „Jet“ je na Obr. 3e.

Posledním krokem zpracování obrazu je číselný popis jednotlivých vlastností bublin. Pomocí očíslování bublin byla snadno spočtena jejich velikost a pozice jejich těžiště. Důležitým výpočtem bylo určení skutečné velikosti pixelu, které se provádělo pomocí zjištění polohy stěn mikrokanálu v obraze a známé velikosti mikrokanálu. Velikost jednoho pixelu se pohybovala okolo hodnoty 0,01 mm, v závislosti na vzdálenosti objektivu fotoaparátu od vizualizační elektrochemické cely.

Díky procesu zpracování obrazu byly získány potřebné informace o každé bublině v každém pořízeném obraze dvoufázového toku. Informace z každého kroku zpracování obrazu byly ukládány do výsledného souboru, který tak pro každou bublinu obsahoval informace o jejích okrajích, souřadnicích těžiště, její ploše v pixelech a milimetrech čtverečních, jejím ekvivalentním průměru a přiřazenému číslu. Soubor dále obsahoval původní fotografii, výsledný obraz s očíslovanými bublinami, celkový počet nalezených bublin, součet jejich plochy, nebo i informaci o velikosti pixelu v milimetrech.

3. Výsledky a diskuze

Dvoufázové charakteristiky byly vyhodnoceny pro různé experimentální podmínky (průtok kapalně fáze, proudová hustota), při zvýšeném tlaku v aparatuře a s použitím elektrod se dvěma různými hodnotami drsnosti povrchu. Všechny výsledky jsou prezentovány s ohledem na aplikaci elektrochemického mikroreaktoru.

Experimenty byly prováděny za přetlaku 1 bar vůči atmosférickému tlaku, přičemž tato hodnota tlaku byla udržována na výstupu z vizualizační cely. Kvůli konstrukčním omezením vizualizační cely nebylo možné provádět experimenty za vyšších tlaků.

Pro zjištění vlivu drsnosti povrchu elektrody na režim toku byly provedeny experimenty s odlišně opracovanými elektrodami. Měření pro drsnost povrchu 800 bylo provedeno za zvýšeného tlaku, měření pro drsnost povrchu 1000 bylo provedeno za atmosférického tlaku.

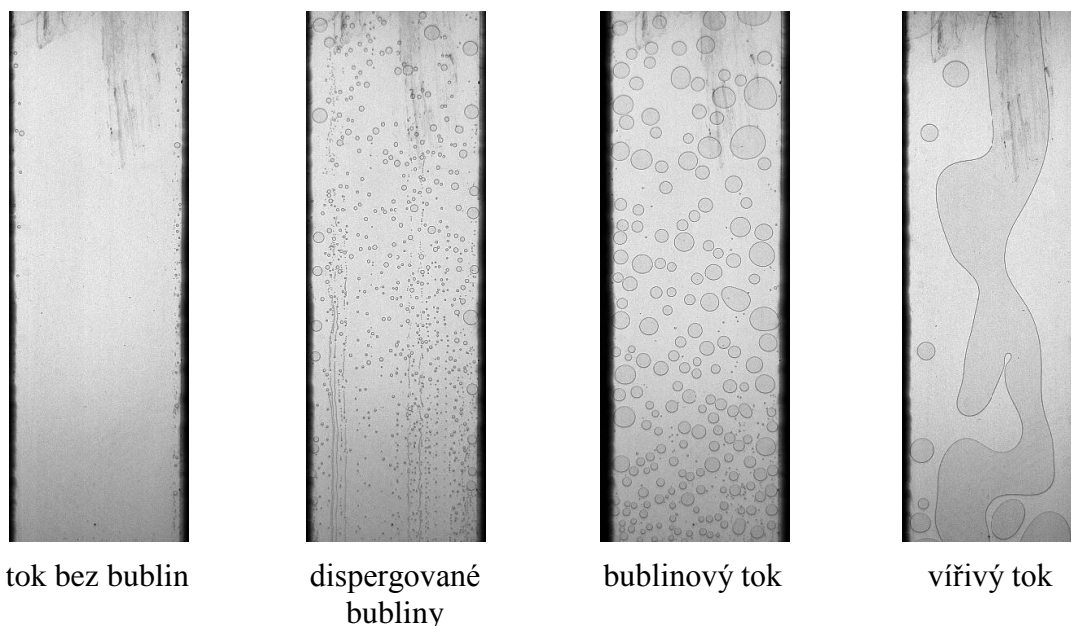
Získané výsledky byly porovnány s publikovanými daty získanými za atmosférického tlaku v mikrokanálu s drsností elektrod 800 [4].

3.1 Režimy toku

Snímky dvoufázového toku byly vizuálně posouzeny vzhledem k počtu bublin, jejich velikosti a celkovému charakteru toku. Na základě těchto informací byl dvoufázový tok zařazen do jednoho ze čtyř vyskytujících se režimů toku. Ve studovaném rozsahu experimentálních podmínek se jednalo o čtyři následující režimy: tok bez bublin, dispergované bubliny, bublinový tok a vířivý tok. Příklady těchto režimů jsou uvedeny na Obr. 4.

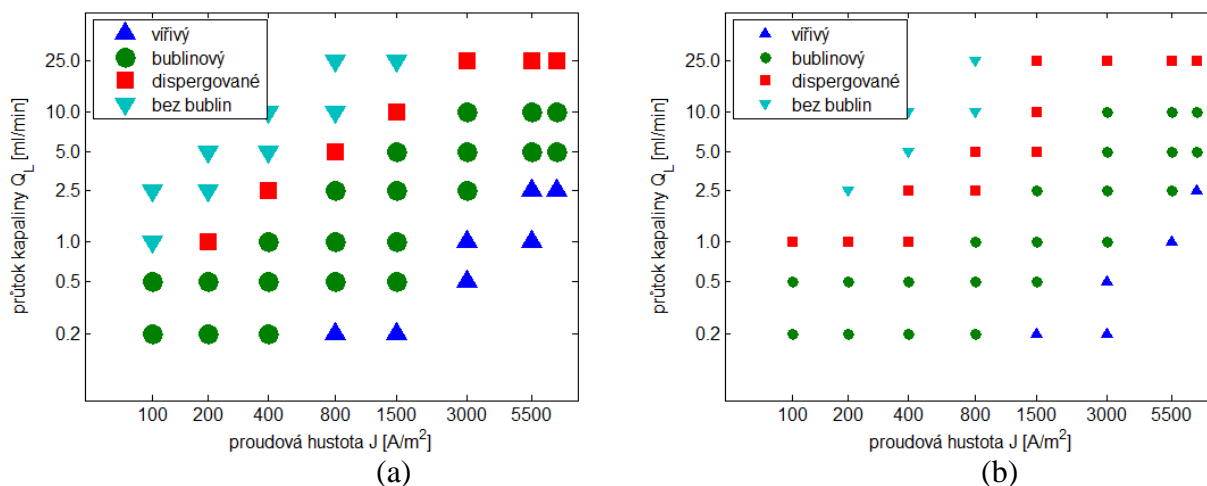
Kvalitativně nalezené režimy odpovídají režimům uvedeným v [4] a shodují se pro obě drsnosti povrchu a tlaky v aparatuře, pouze experimentální podmínky jejich existence se liší (viz níže).

Pro znázornění závislosti režimu toku na operačních podmínkách byly zkonstruovány mapy režimů toku. V těch byl režim toku zobrazen graficky v závislosti na průtoku kapalně fáze a proudové hustotě. Na Obr. 5a je znázorněna mapa režimů toku pro drsnost elektrody 1000 a atmosférický tlak. Pro porovnání s publikovanými daty je uvedena převzatá mapa režimů toku pro atmosférický tlak a drsnost elektrody 800 Obr. 5b [4].



Obr. 4: Příklady režimů toku

Z map je zřejmé, že dané režimy toku tvoří více méně diagonální pásy a vyskytují se tak pro několik kombinací průtoku kapalné fáze a proudové hustoty. Pokud se tedy provozními podmínkami nacházíme uvnitř oblasti daného režimu toku, lze současně zvyšovat nebo současně snižovat hodnoty provozních podmínek (Q_L a J), aniž by došlo ke změně režimu toku. Uvedené trendy kvalitativně odpovídají trendům publikovaným v literatuře [4, 22].



Obr. 5: Mapa režimů toku pro drsnost povrchu elektrody 1000 a atmosférický tlak (a) a drsnost elektrody 800 a atmosférický tlak (b) [4].

Vliv drsnosti povrchu katody, kde se elektrochemicky vyvíjí vodík, na vzniklý režim toku je názorně vidět na Obr. 5.

Pro obě drsnosti povrchu katody je zřejmé, že ve studovaném rozsahu operačních parametrů je nejčastějším režimem bublinový tok. Zatímco ale při drsnosti katody 800 je režim toku dispergovaných bublin přítomný také v relativně širokém rozsahu operačních podmínek, u jemnější katody s drsností 1000 je tento režim toku značně potlačen. V oblastech provozních podmínek, kde pro obě drsnosti povrchu vzniká bublinový režim toku, jsou vznikající bubliny na katodě o drsnosti 1000 větší než bubliny vznikající na katodě o drsnosti 800.

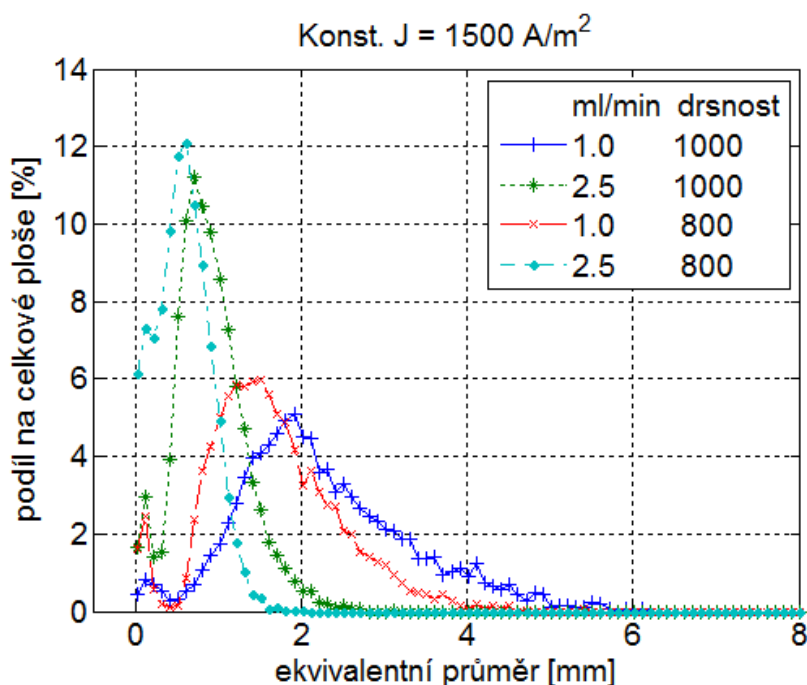
Z předložené mapy režimů toku je také patrné, že i vířivý režim toku nastává u katody o drsnosti 1000 pro nižší proudové hustoty, respektive vyšší průtoky kapalně fáze než pro katodu o drsnosti 800.

3.2 Rozdělení velikosti bublin

Data získaná pomocí technik zpracování obrazu (kap. 2.4) sloužila především ke kvantitativnímu výpočtu rozdělení velikosti bublin.

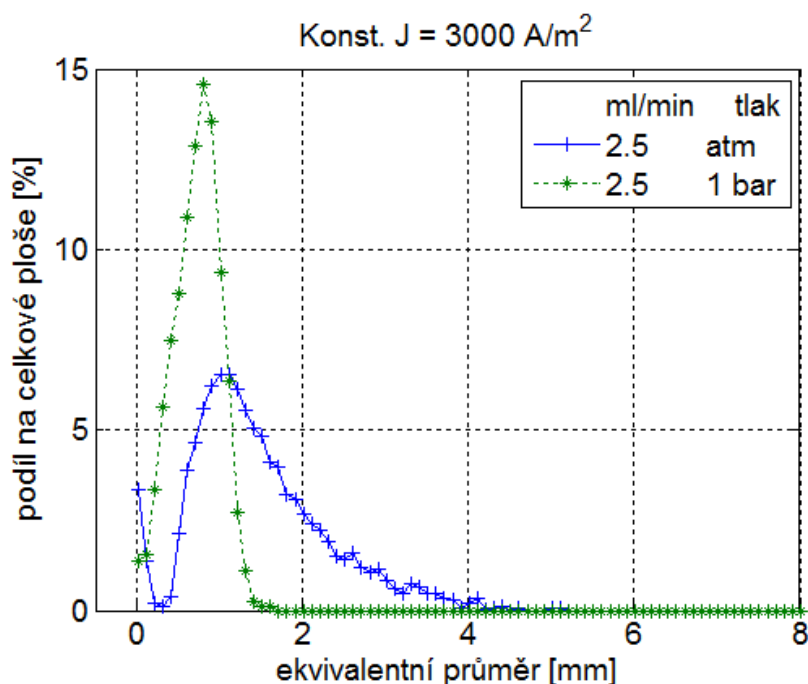
V kapitole 3.1 bylo ukázáno, že na jemnější elektrodě vznikají obecně větší bubliny. Porovnání rozdělení velikostí bublin na katodách o drsnosti 800 (drsnější) a 1000 (jemnější), tyto výsledky potvrzuje. Na Obr. 6 je příklad srovnávacího histogramu rozdělení velikosti bublin pro proudovou hustotu 1500 A/m^2 a průtoky kapalně fáze 1 a 2,5 ml/min. Je zde jasně vidět, že na jemnější katodě o drsnosti 1000 vznikají v porovnání s drsností 800 větší bubliny, přičemž mají i širší rozdělení velikostí.

Pokud se ale zvyšují jak průtoky kapalně fáze, tak i proudová hustota směrem k maximálním studovaným hodnotám, rozdíl v rozdělení velikosti bublin se začíná vytrácet.



Obr. 6: Porovnání vlivu drsnosti elektrod na rozdělení velikosti bublin pro nízké průtoky kapalně fáze, data pro drsnost 800 převzata z [4].

Vzhledem k malému počtu fotografií jsou vypočtené rozdělení velikosti bublin pro tlaková měření spíše informační. Také vzhledem k tomu, že pro zvýšený tlak dochází k velkému posunu režimů toku, se nepodařilo vyhodnotit mnoho porovnání rozdělení velikosti bublin v závislosti na zvýšení tlaku. Nicméně vyhodnocená porovnání potvrzují trendy diskutované v kapitole 3.1. Na Obr. 7 je vidět, že při zvýšení tlaku na 1 bar přetlaku vůči atmosféře, při průtoku kapalně fáze 2,5 ml/min a proudové hustotě 3000 A/m^2 se bubliny výrazně zmenší a podstatně se zúží rozdělení velikosti bublin.



Obr. 7: Porovnání vlivu zvýšeného tlaku v aparatuře na rozdělení velikosti bublin, data pro atmosférický tlak převzata z [4]

4. Závěr

Výsledky ukazují, že v mikrokanálu s malým poměrem tloušťky a šířky mohou vzniknout čtyři režimy toku, a to proudění bez bublin, dispergované bubliny, bublinový tok a vířivý tok. Režimy toku se liší především velikostí a chováním bublin plynu, přičemž jako nejperspektivnější režim toku pro elektrochemické děje se jeví režim dispergovaných bublin. Sestrojené mapy režimů toku ukazují, za jakých podmínek dochází ke vzniku jednotlivých režimů toku. Ze srovnávacích map režimů toku je možné posoudit vlivy drsnosti použité katody a zvýšení tlaku v aparatuře na režim toku. Je patrné, že při použití jemnější katody se zmenší podíl výskytu toku s dispergovanými bublinami. Při zvýšení tlaku v aparatuře se režim toku s dispergovanými bublinami objevuje při vyšších proudových hustotách, respektive nižších průtocích kapalné fáze.

Výsledky rozdělení velikosti bublin, získané pomocí metod zpracování obrazu s použitím MATLAB Image processing toolboxu, potvrdily očekávané trendy, tedy že se zvyšujícím se průtokem kapalné fáze se bubliny zmenšují a také se zmenšuje šířka rozdělení jejich velikosti. Naopak s rostoucí proudovou hustotou se bubliny zvětšují a také se zvětšuje šířka rozdělení jejich velikosti. Při použití elektrody o menší drsnosti vznikají obecně větší bubliny, ale tento efekt je potlačován s rostoucí proudovou hustotou a se zároveň rostoucím průtokem kapalné fáze. Při zvýšeném tlaku v aparatuře vznikají podle předpokladů menší bubliny, jelikož vzniklý plyn má menší objem.

Z výsledků jasně vyplývá, že vliv celkového tlaku v aparatuře je podstatně výraznější než vliv drsnosti elektrod. Další studie by se mohla zaměřit na důkladnější prozkoumání režimů toku při zvýšeném tlaku.

Seznam symbolů

D	tloušťka mikrokanálu, mezielektrodová vzdálenost	[m]
I	proud	[mA]
J	proudová hustota	[A·m ⁻²]
L	délka mikrokanálu	[m]
p	tlak	[Pa]

Q_L	průtok	$[\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}]$
u_G, u_L	mimovrstvová rychlost plynu a kapaliny	$[\text{m}\cdot\text{s}^{-1}]$
U	napětí	$[\text{V}]$
V	objem	$[\text{m}^3]$
W	šířka mikrokanálu	$[\text{m}]$
μ	dynamická viskozita	$[\text{Pa}\cdot\text{s}]$
ρ	hustota	$[\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}]$
σ	povrchové napětí	$[\text{N}\cdot\text{m}^{-1}]$

Seznam literatury

1. Ehrfeld, W., V. Hessel, and V. Haverkamp, *Microreactors*, in *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*, seventh ed. 2007.
2. Nguyen, N.-T. and S.T. Wereley, *Fundamentals and applications of microfluidics*. Microelectromechanical systems series. 2002, Boston, MA: Artech House.
3. Brand, O., et al., *Micro Process Engineering: Fundamentals, Devices, Fabrication and Applications*. 2006: Wiley-VCH, Weinheim, Germany.
4. Kříst'ál, J., *Study of gas-liquid flow in the thin-gap channel*. 2008, VŠCHT Praha.
5. Chen, G., J. Yue, and Q. Yuan, *Gas-Liquid Microreaction Technology: Recent Developments and Future Challenges*. Chinese Journal of Chemical Engineering, 2008. **16**(5): p. 663-669.
6. Pohorecki, R., *Effectiveness of interfacial area for mass transfer in two-phase flow in microreactors*. Chemical Engineering Science, 2007. **62**(22): p. 6495-6498.
7. Fu, B.R. and C. Pan, *Bubble growth with chemical reactions in microchannels*. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2009. **52**(3-4): p. 767-776.
8. Huh, C., J. Kim, and M.H. Kim, *Flow pattern transition instability during flow boiling in a single microchannel*. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2007. **50**(5-6): p. 1049-1060.
9. Hessel, V., et al., *Gas-liquid and gas-liquid-solid microstructured reactors: Contacting principles and applications*. Industrial and Engineering Chemistry Research, 2005. **44**(25): p. 9750-9769.
10. Jähnisch, K., et al., *Direct fluorination of toluene using elemental fluorine in gas/liquid microreactors*. J. Fluorine Chem., 2000. **105**: p. 117-128.
11. Wenn, D.A., et al., *A mesh microreactor for 2-phase reactions*. Lab on a Chip, 2003. **3**: p. 180-186.
12. Lund, H. and O. Hammerich, *Organic electrochemistry*. 2001, New York: Marcel Dekker.
13. Paddon, C.A., et al., *Towards paired and coupled electrode reactions for clean organic microreactor electrosynthesis*. Journal of Applied Electrochemistry, 2006. **36**(6): p. 617-634.
14. Attour, A., et al., *A thin-gap cell for selective oxidation of 4-methylanisole to 4-methoxybenzaldehyde-dimethylacetal*. Journal of Applied Electrochemistry, 2008. **38**(3): p. 339-347.
15. Attour, A., et al., *Oxidation kinetics of 4-methylanisole in methanol solution at carbon electrodes*. Journal of Applied Electrochemistry, 2007. **37**(7): p. 861-870.
16. Kodym, R., et al. *Mathematical model of a secondary current density distribution in the segmented thin-gap flow-through electrosynthesis cell*. in *CHISA 2006*. 2006. Prague, CZ.
17. Kristal, J., et al., *Electrochemical microreactor and gas-evolving reactions*. Electrochemistry Communications, 2008. **10**(2): p. 204-207.
18. Montante, G., D. Horn, and A. Paglianti, *Gas-liquid flow and bubble size distribution in stirred tanks*. Chemical Engineering Science, 2008. **63**(8): p. 2107-2118.
19. Bellido, G.G., et al., *The bubble size distribution in wheat flour dough*. Food Research International, 2006. **39**(10): p. 1058-1066.

20. Tachikawa, K., P.S. Dittrich, and A. Manz, *Microfluidic imaging: A novel concept for pixelation of chemical and biological samples*. Sensors and Actuators B: Chemical. **In Press, Corrected Proof**.
21. Gonzalez, R.C., R.E. Woods, and S.L. Eddins, *Digital Image Processing Using Matlab*. 2nd ed. 2004: Pearson Prentice Hall.
22. Waelchli, S. and P. Rudolf von Rohr, *Two-phase flow characteristics in gas-liquid microreactors*. International Journal of Multiphase Flow, 2006. **32**(7): p. 791-806.

Petr Zálaha
ÚCHP AV ČR, v.v.i., Rozvojová 2/135, 165 02 Praha 6
Tel.: 220390237, E-mail: zaloha@icpf.cas.cz