

BURSA TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ❖ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**MİNİ KANAL FİSCHER TROPSCH
REAKTÖRÜNÜN HİDRODİNAMİĞİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Selay UZUNLAR

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

TEMMUZ 2019

BURSA TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ❖ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**MİNİ KANAL FİSCHER TROPSCH
REAKTÖRÜNÜN HİDRODİNAMİĞİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**Selay UZUNLAR
(161080507)**

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Tez Danışmanı: Dr. Öğr. Üyesi Ertuğrul ERKOÇ

TEMMUZ 2019

BTÜ, Fen Bilimleri Enstitüsü'nün 161080507 numaralı Yüksek Lisans Öğrencisi Selay UZUNLAR, ilgili yönetmeliklerin belirlediği gerekli tüm şartları yerine getirdikten sonra hazırladığı "MİNİ KANAL FİSCHER TROPSCH REAKTÖRÜNÜN HİDRODİNAMİĞİ" başlıklı tezini aşağıda imzaları olan jüri önünde başarı ile sunmuştur.

Tez Danışmanı : **Dr. Öğr. Üyesi Ertuğrul ERKOÇ**
Bursa Teknik Üniversitesi

Jüri Üyeleri : **Prof. Dr. Atakan AVCI**
Bursa Uludağ Üniversitesi

Prof. Dr. Mehmet ÇOPUR
Bursa Teknik Üniversitesi

Savunma Tarihi : 5 Temmuz 2019

FBE Müdürü : **Doç. Dr. Murat ERTAŞ**
Bursa Teknik Üniversitesi/...../.....

İNTİHAL BEYANI

Bu tezde görsel, işitsel ve yazılı biçimde sunulan tüm bilgi ve sonuçların akademik ve etik kurallara uyularak tarafımdan elde edildiğini, tez içinde yer alan ancak bu çalışmaya özgü olmayan tüm sonuç ve bilgileri tezde kaynak göstererek belgelediğimi, aksinin ortaya çıkması durumunda her türlü yasal sonucu kabul ettiğimi beyan ederim.

Öğrencinin Adı Soyadı: Selay UZUNLAR

İmzası :

X X X X X



Eşime ve bebeğime...

ÖNSÖZ

Yüksek lisans sürecimin tamamında ve bu tez çalışması boyunca bilgisi ve tecrübesiyle desteğini esirgemeyen, görüş ve düşünceleriyle bana devamlı yol gösteren tez danışmanım Dr. Öğr. Üyesi Ertuğrul Erkoç'a, deneyleri yapmamda yardımcı olan değerli çalışma arkadaşlarım Arş. Gör. Gözde Geçim ve yüksek lisans öğrencisi Sinan Dönmez'e, tezi yazarken ve araştırmalarımı yaparken desteğini eksik etmeyen değerli arkadaşım Arş. Gör. Özge Akyavaşoğlu'na ve ayrıca çalışmamızın tamamını 117M044 numaralı proje ile destekleyen TÜBİTAK'a en içten dileklerle teşekkür ederim.

Beni her zaman motive eden ve bana tüm kalpleriyle inanan aileme, tüm bu süreç içinde cesaretimi kaybetmeden çalışmamı sağlayan, üstün sabrıyla bana her zaman destek olan eşim Semih Uzunlar'a ve varlığı bana güç veren bebeğime en derin sevgilerimi sunarım.

Temmuz 2019

Selay Uzunlar

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖNSÖZ	v
İÇİNDEKİLER	vi
KISALTMALAR	viii
SEMBOLLER	ix
ÇİZELGE LİSTESİ	x
ŞEKİL LİSTESİ	xi
ÖZET	xii
SUMMARY	xiv
1. GİRİŞ	1
1.1 Fischer Tropsch Sentezi	1
1.1.1 Genel fischer tropsch tepkimeleri ve kullanılan başlıca katalizörler	1
1.1.2 Fischer tropsch reaktörleri	3
1.2 Motivasyon	8
2. LİTERATÜR ÖZETİ	9
2.1 İki Fazlı Akış	9
2.2 Yatay borularda/kanallarda akış rejimleri	9
2.3 Taylor Akış	11
2.3.1. Taylor akış uygulamaları	12
2.3.2 Boyutsuz sayılar ve kullanımları	13
2.3.3 Küçük kanallarda Taylor akış ve hidrodinamiği	14
2.3.3.1 Sıvı film kalınlığı	15
2.3.3.2 Kabarcık şekli ve hızı	16
2.3.3.3 Basınç düşüşü	18
2.3.3.4 Gaz tutma ve gaz boşluk oranı	18
2.3.3.5 Sluglardaki akış sirkülasyonu	19
2.3.3.6 Kabarcık ve slug uzunlukları	20
2.4 Taylor Akışta Kütle Transferi	23
3. MATERYAL VE YÖNTEM	26
3.1 Materyal Özellikleri	26
3.2 Deneylerin Düzenegi	27
3.2 Deneylerin Yapılışı	28
4. DENEYSEL BULGULAR VE TARTIŞMA	29
4.1 Deneysel Bulgular	29
4.2 Deneysel Bulguların Değerlendirilmesi	30
4.2.1 Gaz ve sıvı yüzeysel hız etkisi	30
4.2.2 Reaktör tipinin etkisi	31
4.2.3 Gaz türünün etkisi	32
4.3 Literatür Modelleri ve Deneysel Bulguların Karşılaştırılması	32
4.4 Minikanallarda Taylor Akışta Uzunluk Hesaplamaları için Yeni Bir Model ..	35
4.4.1 Yeni modelin uygunluk değerine göre değerlendirilmesi	36

4.4.2 Yeni modelin hıza ve kırılma noktasına göre değerlendirilmesi	38
4.4.3 Yeni modelin reaktöre göre değerlendirilmesi	40
5. SONUÇ VE ÖNERİLER.....	42
KAYNAKLAR	44
EKLER.....	49
EK A: Kabarcık ve Slugların Farklı Hızlardaki Görüntüleri.....	49
EK B: Literatür Modelleri ile Deneysel Sonuçların Karşılaştırılması.....	59
EK C: Yeni Modele Göre Hız-Uzunluk Grafikleri.....	62
ÖZGEÇMİŞ.....	64



KISALTMALAR

Bo (Eö)	: Bond Sayısı
Ca	: Capillary (kılcallık) Sayısı
CFD	: Computational Fluid Dynamics (Hesaplamalı Akışkanlar Dinamiği)
FT	: Fischer Tropsch
FTS	: Fischer Tropsch Sentezi
HTFT	: High Temperature Fischer Tropsch
LTFT	: Low Temperature Fischer Tropsch
Micro-PIV	: Particle Image Velocimetry (Mikro Parçacık Hız Görüntüleme)
Re	: Reynolds Sayısı
VOF	: Volume of Fluid (Akışkan Hacmi Modeli)
We	: Weber Sayısı
WGS	: Water-Gas Shift (Su-Gaz Dönüşümü)

SEMBOLLER

a	: Spesifik yüzey alanı
d_h	: Hidrolik kanal çapı (mm)
d_B	: Kabarcık çapı (mm)
f	: Kabarcık frekansı
μ	: Dinamik viskozite
g	: Yerçekimi ivmesi
ρ	: Yoğunluk
$\Delta\rho$: Yoğunluk farkı
σ	: Yüzey gerilmesi
V	: Çizgisel hız
Hz	: Hertz (1/s)
L_B	: Kabarcık uzunluğu
L_S	: Slug uzunluğu
L_{UC}	: Birim hücre uzunluğu
ΔP	: Basınç düşüşü
R^2	: Regrasyon (uygunluk) değeri
U_G	: Gaz yüzeysel hızı
U_L	: Sıvı yüzeysel hızı
U_{TP}	: İki fazlı yüzeysel hız
U_0	: Durgun bir sıvı içinde kabarcık yükselme hızı
δ	: Sıvı film kalınlığı

ÇİZELGE LİSTESİ

Sayfa

Çizelge 1.1 : Fischer tropesch denklemleri	2
Çizelge 2.1 : Taylor akışına etki eden boyutsuz sayılar	14
Çizelge 2.2 : Film kalınlığı için deneysel korelasyonlar	16
Çizelge 2.3 : Taylor akışında kabarcık ve slug uzunluklarını tahmin etmek için seçilmiş korelasyonlar	21
Çizelge 2.4 : Fazlar arası spesifik yüzey alanı hesaplamaları	24
Çizelge 3.1 : Deneylerde kullanılan gazların özellikleri	26
Çizelge 3.2 : Deneylerde kullanılan sıvının özellikleri	26
Çizelge 4.1 : Deneylerde hesaplanan boyutsuz sayı değerleri	29
Çizelge 4.2 : Sabit U_L 'de U_G 'ye göre kabarcık ve slug uzunlukları	30
Çizelge 4.3 : Sabit U_G 'de U_L 'ye göre kabarcık ve slug uzunlukları	31
Çizelge 4.4 : L_B için ön sabitler ve üstel değerlerin yeni değerlerle karşılaştırılması	34
Çizelge 4.5 : L_S için ön sabitler ve üstel değerlerin yeni değerlerle karşılaştırılması	34
Çizelge 4.6 : L_B için önerilen yeni modellemeler	35
Çizelge 4.7 : L_S için önerilen yeni modellemeler	36
Çizelge 4.8 : Kırılma noktalarına göre yeni modeller	40
Çizelge 4.9 : Reaktör tipine göre yeni modeller	40
Çizelge A.1 : $U_L=20$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	49
Çizelge A.2 : $U_L=30$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	50
Çizelge A.3 : $U_L=40$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	51
Çizelge A.4 : $U_L=50$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	52
Çizelge A.5 : $U_L=60$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	53
Çizelge A.6 : $U_L=70$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	54
Çizelge A.7 : $U_L=80$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	55
Çizelge A.8 : $U_L=90$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	56
Çizelge A.9 : $U_L=100$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	57
Çizelge A.10 : $U_L=200$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri	58
Çizelge B.1 : L tipi reaktörde literatürdeki modellerin deneysel verilerle karşılaştırılması	59
Çizelge B.2 : Y tipi reaktörde literatürdeki modellerin deneysel verilerle karşılaştırılması	60
Çizelge B.3 : T tipi reaktörde literatürdeki modellerin deneysel verilerle karşılaştırılması	61

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 1.1 : Fischer Tropsch reaktörleri	4
Şekil 1.2 : FTS için mikroreaktörlerin şematik gösterimi a)mikro yapılı reaktör b)mikrokanal reaktörü c) mikro sabit yatak reaktörü.....	6
Şekil 2.1 :İki fazlı akış türleri	9
Şekil 2.2 : Yatay borulardaki akış rejimleri.....	10
Şekil 2.3 : Gaz-sıvı Taylor akış	11
Şekil 2.4 : Minikanalda iki farklı anda gaz -sıvı Taylor akış modelinin görüntüsü	11
Şekil 2.5 :İ Taylor akışta sluglarda girdap oluşumu	12
Şekil 2.6 : Kare kanallarda kabarcık şekilleri	16
Şekil 2.7 : Farklı Ca sayılarında kabarcık şekillerinin görünümü	17
Şekil 2.8 : Sluglardaki akış sirkülasyonu a) $Ca > 0.5$ bypass akış b) $Ca < 0.5$ kabarcık başında tek durgunluk halkası c) $Ca < 0.5$ kabarcık başında ve slugda iki durgunluk halkası	19
Şekil 2.9 : Taylor akışta farklı kütle transfer basamakları.....	24
Şekil 3.1 : Bronkhorst mini-cori akış kontrolörü.....	27
Şekil 3.2 : Dantec Speed Sense 1040 kamera	27
Şekil 3.3 : L,Y,T tipi minikanal reaktörler	27
Şekil 3.4 : Deney düzeneği	28
Şekil 4.1 : a)Sabit U_L 'de gaz hızına bağlı L_B ve L_S b)Sabit U_G 'de sıvı hızına bağlı L_B ve L_S	31
Şekil 4.2 : Reaktör tipine göre L_B , L_S ve L_{UC} 'nin karşılaştırılması	32
Şekil 4.3 : $L_{Bdeneyssel}$ ve $L_{Bteorik}$ uygunluklarının literatür modellerine göre karşılaştırılması	33
Şekil 4.4 : $L_{Sdeneyssel}$ ve $L_{Steorik}$ uygunluklarının literatür modellerine göre karşılaştırılması	33
Şekil 4.5 : Kabarcık uzunluklarının deneysel ve teorik karşılaştırılması	37
Şekil 4.6 : Slug uzunluklarının deneysel ve teorik karşılaştırılması.....	37
Şekil 4.7 : : Farklı sıvı hızı aralıklarında R^2 değerleri	39
Şekil C.1 : : Yeni modele göre hesaplanan L_B değerlerinin uygunluğu	62
Şekil C.2 : : Yeni modele göre hesaplanan L_S değerlerinin uygunluğu	63

MİNİ KANAL FİSCHER TROPSCH REAKTÖRÜNÜN HİDRODİNAMİĞİ

ÖZET

Fischer Tropsch sentezi için mikroyerler son zamanlarda hem akademik hem de endüstriyel araştırma toplulukları tarafından büyük ilgi görmüştür. Bu yerler diğer yerlerde gözlenen sorunlara alternatif çözümler sunar. Endüstriyel işletmelerde sermaye maliyetlerinde önemli bir düşüş ve yer boyutlarında avantaj sağlarlar.

FTS'inde kullanılan sentez gazı; kömürden, doğal gazdan veya biyokütleden üretilebilir ve hammadde açısından zengindir. Çok iyi ısı ve kütle transferi gerektiren bu sentez, geleceğin enerji sistemlerinde önemli bir rol üstlenmeye adaydır.

Taylor akışı, çok verimli ısı ve kütle transferinin ürün seçiciliğinde önemli olduğu, çok fazlı reaksiyonlarda ürün verimliliğini artırmak için kullanılan mikro yerlerdeki gaz-sıvı reaksiyonlarının gerçekleşmesinde sıkça tercih edilen iki fazlı bir akıştır. Taylor akışıyla ilgili çalışmalar pratikteki çok sayıda uygulamalarından dolayı son birkaç yılda bir çok araştırmaya konu olmuştur.

Bu tezde mini ve mikro kanallarda kontrollü ve tam Taylor akışı sağlayarak; Taylor akış rejimindeki kabarcıklar arasında kalan sıvı slug içindeki girdap oluşumu sayesinde Fischer Tropsch için verimli ısı ve kütle transferi sağlayan hidrodinamik koşullar incelenmiştir. Bilinen çalışmalardan farklı olarak gerçek reaksiyon gazları ve sıvısı kullanılarak besleme yapılmıştır.

Çalışma 4 kısımdan oluşmaktadır. İlk aşamada 1 mm çapındaki L,Y,T tipi minikanal yerlerde CO ve H₂ gazları ile olefin sıvısı arasında düzenli Taylor akışı veren hızlar ve şartlar tespit edilmiştir.

İkinci aşamada boyutsuz sayılar hesaplanmış, buna bağlı olarak literatür modelleri ile deneysel sonuçlar MATLAB yazılımı kodlamaları kullanılarak karşılaştırılmıştır.

Üçüncü aşamada yeni bir model önermesi yapılarak slug ve kabarcık uzunlukların deneysel ve teorik uygunluğuna, kanal tipleri ve gaz türüne göre değişimlerine bakılmıştır.

Son aşamada ise önerilen modellemeler, kabarcık ve slug uzunluğu hesaplanmasında gaz tipinden bağımsız olarak kullanılabilmesi için düzeltilmiş ve L,Y,T tipi mini kanallarda kullanılabilecek 3'er model elde edilmiştir.

Çalışma sonunda, kabarcık ve slug uzunluklarının gaz ve sıvı yüzeysel hızlarından önemli ölçüde etkilendiği, sisteme gönderilen gaz türünün uzunluklara etkisinin az olduğu ve bu nedenle ihmal edildiği, kanal tipinin slug uzunluğu üzerinde kabarcık uzunluğundan daha etkili olduğu sonucuna varılmıştır.

Anahtar Kelimeler: Fischer Tropsch Sentezi, Minikanal, Hidrodinamik, Taylor Akıř, Mikroreakt3r



HYDRODYNAMICS OF THE MINICHANNEL FISCHER TROPSCH REACTOR

SUMMARY

Microreactors for Fischer Tropsch Synthesis (FTS) have drawn intense interest from both academia and industrial reaches groups recently. They provide alternative solution to traditional reactor drawbacks. They conduce fast heat and mass transfer by reducing transfer distances. They lead drop in industrial capital cost and they have miniature size benefits.

Syngas as a reactant of FTS is very rich about raw material and it can be produced form coal biodiesel. While FTS can be called as candidate to dominate future energy systems, it requires great heat and mass transfers about product selectivity. So, it is come up with microreactors for multi-phase flows.

Taylor flows is used to perform gas-liquid reaction in microchannel and it is efficient for harsh reactions with large transfer area. There have been many reaches for investigating it performance in different area.

In this thesis, It was investigated Taylor floe hydrodynamics which is lead heat and mass transfer by vortex is between slug and bubble with controlled and exact Taylor flow. The difference of this study from literature is using the real reaction gas and liquids.

The study can be divided four parts. In first part It is identified the velocities which is forming exact Taylor flow in 1 mm micro channel with L, Y, T type connection. In the second part dimensionless number is calculated and the obtained bubble and slug lengths are compared with the modellings in literature. Then, the following it is suggested new models up to slug and bubble length in different reactor and gas type with high correlations. Lastly, the models are regulated as independent form gas type to calculate bubble and slug length as three equations which is representing reactor connection type L, Y, T.

As a result, it is determined there are high efficiency of velocity on bubble and slug length while gas type is poor effect on them. So density, surface tension, and viscosity of the gas is come about as efficient parameters and Cannel connection type is more active on them.

Keywords: Fischer Tropsch Synthesis, Minichannel, Hydrodynamic, Taylor Flow, Microreactor

1. GİRİŞ

1.1 Fischer Tropsch Sentezi

Fischer Tropsch sentezi (FTS); H₂ ve CO gazları içeren sentez gazlarından, farklı katalizörler varlığında ve yüksek basınç altında gaz ve sıvı hidrokarbon karışımlarının elde edilmesidir.

FTS ilk olarak 1902 yılında Almanya'da Sabatier ve Sanderens tarafından nikel katalizör varlığında hidrojen ve karbon monoksitten metan üretimi için başlamıştır. Daha sonra 1920'lerde Alman bilim adamları Franz Fischer ve Hans Tropsch bu sentezi ayrıntılı olarak ele almışlardır ve farklı katalizörlerin varlığında sentez gazından katalitik olarak petrol türevi sıvı hidrokarbon üretimi olarak (SENTROL işlemi) patentlemişlerdir. Bu sentez; kömür rezervlerince zengin olan Almanya'nın özellikle II. Dünya Savaşı esnasındaki petrol ihtiyacını karşılamak için kömürden sentetik sıvı yakıt eldesi amacıyla kullanılmıştır ve kısa bir süre içinde endüstriyel alanda kullanım için de geliştirilmiştir. 1940'ın sonunda 1 milyon tondan fazla FT sıvısı üretilmiştir. Savaş sonrasında kömürden elde edilen sıvı yakıtlar karlı değildi ve tek yeni üretim tesisi Güney Afrika'da, politik nedenlerle, 1950'de Sasolburg'da inşa edildi. 1960 ve 1970'li yıllarda petrolün ucuz ve bol olması FTS'ne olan ilgiyi azaltmıştır ancak son çevresel sorunlar ve artan petrol fiyatları tekrar FT teknolojisini gündeme getirmiştir [1,2].

FTS petrol kaynaklı olmayan kaynaklardan temiz yakıtlar ve kimyasallar üretmek için etkili ve önemli bir teknolojidir [3,4]. Fischer Tropsch sentezinde kullanılan sentez gazı; kömürden, doğal gazdan veya biyokütleden üretilir ve hammadde açısından zengindir. Çok iyi ısı ve kütle transferi gerektiren bu sentez, geleceğin enerji sistemlerinde önemli bir rol üstlenmeye adaydır.

1.1.1 Genel fischer tropsch tepkimeleri ve kullanılan başlıca katalizörler

FTS'deki ürün dağılımı çok geniştir ve kapsamlı güncel araştırmanın büyük bir kısmı, istenen ürünlere seçiciliği kontrol etmeye odaklanmaktadır. Tepkimeler

ekzotermiktir. Isının reaktörden uzaklaştırılabilmesi için yeterli soğutma ve kararlı reaksiyon koşullarına sahip olmak FTS'nin önemli yönleridir. Genel FTS süreci Çizelge 1.1'deki kimyasal denklemlerle açıklanmaktadır [5,6].

Çizelge 1.1: Fischer tropsch denklemleri [5]

Reaksiyon Denklemi	Reaksiyon
$2nH_2 + nCO \rightarrow (CH_2)_n + nH_2O$	Genel denklem
$(2n + 1)H_2 + nCO \rightarrow C_nH_{(2n+2)} + nH_2O$	Parafin oluşumu
$2nH_2 + nCO \rightarrow C_nH_{2n} + nH_2O$	Olefin oluşumu
$2nH_2 + nCO \rightarrow C_nH_{(2n+1)}OH + (n - 1)H_2O$	Alkol oluşumu
$CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2$	Su-gaz dönüşümü (WGS)
$C + CO_2 \leftrightarrow 2 CO$	Bourdard reaksiyonu
$3H_2 + CO \rightarrow CH_4 + H_2O$	Metanlaşma

CH₄, FTS'nde en çok oluşma ihtimali olan hidrokarbondur (oluşma sıcaklığı 200°C - 400°C arasında değişmektedir), ancak en az istenen üründür [9]. Su-gaz dönüşüm reaksiyonu ise Co bazlı LTFT'de çok az aktivite gösterir.

FTS'inde katalizör; seçiciliğe ve dönüşüme etki eden en önemli parametrelerdendir. VII. grup geçiş metalleri FTS için aktiftir. Ancak sadece kobalt, nikel, demir ve rutenyum ticari kullanım için yeterli CO hidrojenasyon aktivitesine sahiptir. Fe ve Co yoğun olarak kullanılır. Ru bu reaksiyon için mükemmel aktivite sergilemesine rağmen sınırlı elde edilebilirliği ve maliyeti endüstriyel ölçekte kullanılmasını engeller. Ni, FT standart çalışma koşulları altında çok fazla metan ve kademeli olarak katalitik aktivite kaybıyla sonuçlanan yüksek derecede uçucu karboniller üretir [1,5].

Fe katalizörü için sıcaklık toleransı Co 'ya kıyasla daha yüksektir. Ayrıca Fe, diğer metallerden daha yüksek WGS reaksiyon aktivitesi gösterir. Sonuç olarak Fe katalizörüyle FTS daha fazla H₂ üretme eğilimindedir. Sentez gazının kömür kaynaklı olduğu sistemlere uygulanabilir (düşük H₂ içeriği sebebiyle).

Co Fe'ye kıyasla oldukça aktif bir katalizördür, bu nedenle Co katalizörle yapılan herhangi bir sentez işlem sırasında katalizör kaybı önlenmelidir. Co çok az WGS aktivitesi gösterir. Bu nedenle Co ile yapılan herhangi bir uygulama H₂ bakımından zengin bir ortamda yapılmalıdır [5].

Co katalizörlerinin manganez oksit ile kombin edildiğinde CO dönüşümünü artıran yüksek ağırlıklı alken üretebildiği, ancak bunun sadece kobalt katalizörler ile gözlenmediği ortaya çıkarılmıştır. MnO₂ ve TiO₂ gibi kısmen indirgenebilir oksitlerin kullanılmasının, aktif metal bileşen olarak Co kullanılarak FTS'de hafif alkenlere karşı seçiciliği arttırdığı gösterilmiştir [7]. Alümina destekli kobalt bazlı katalizörler şu anda ticari olarak bazı endüstriyel FT projelerinde kullanılmaktadır [8].

1.1.2 Fischer tropsch reaktörleri

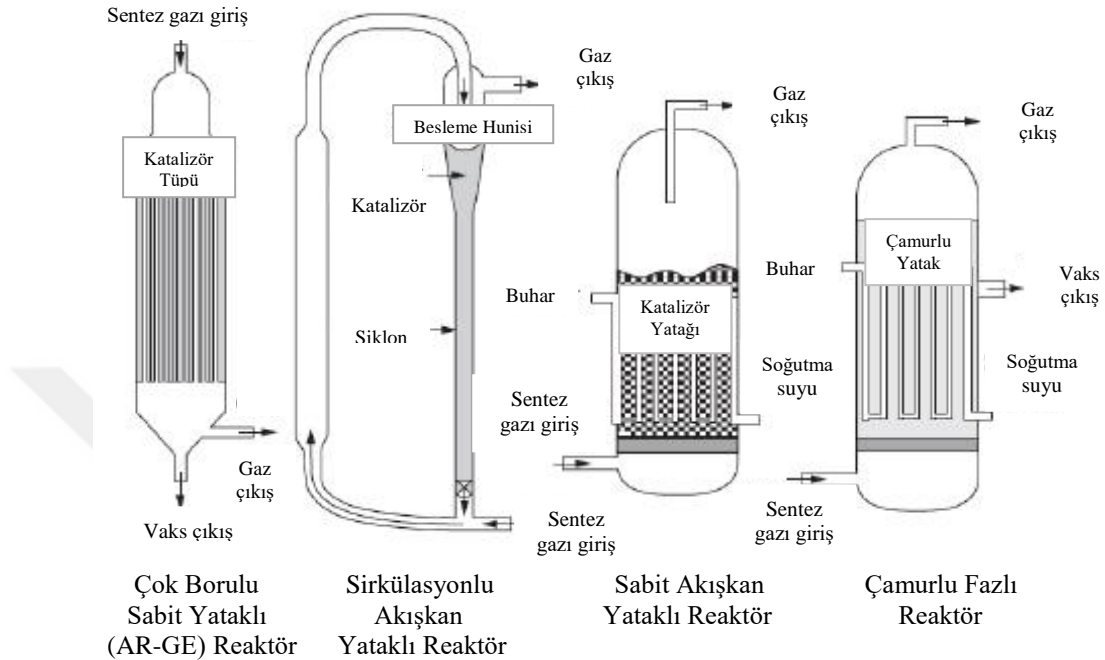
Büyük ölçekli ticari FT reaktörlerinde, optimum ürün seçiciliği ve uzun katalizör ömrü elde etmek için ısı giderme ve sıcaklık kontrolü en önemli tasarım özellikleridir. Uzun çalışmalar sonucu farklı reaktör tasarımları geliştirilmiştir. Ticari olarak 4 farklı tipte reaktör kullanılır. Şekil 1.1' de şematik olarak gösterilmiştir. Bunlar; çok borulu sabit yataklı reaktör, bulamaç fazlı reaktör ve akışkan yataklı reaktördür (sabit veya sirkülasyonlu yataklı).

FT reaktörleri ilk olarak sıcaklık koşullarına göre bir ayrıma girmektedir. Düşük sıcaklık ve yüksek sıcaklıklı FT prosesleri olarak ikiye ayrılır.

Yüksek sıcaklıkta Fischer-Tropsch (HTFT) sentezi, demir bazlı katalizörler ile yaklaşık 300-350°C'de çalıştırılır. HTFT, benzin ve düşük molekül ağırlıklı doğrusal olefinlerinin üretimi için uygundur. Düşük sıcaklıkta Fischer-Tropsch (LTFT) sentezi, demir veya kobalt katalizörleri ile yaklaşık 200-240°C'de çalıştırılır ve yüksek molekül ağırlıklı doğrusal parafinlerin üretimi için uygundur [1,2]. Çok borulu sabit yataklı reaktör(ARGE) ve çamurlu (bulamaç) fazlı reaktörler LTFT proseslerinde kullanılırken akışkan yataklı reaktörler HTFT için kullanılmaktadır.

Sabit yataklı reaktörler, sıcaklık kontrolü kolay olmadığından HTFT için uygun değildir [11]. Çok borulu sabit yataklı reaktörlerde katalizör tüplerin içine yerleştirilirken soğutma suyu tüplerin dış tarafında kalır. Katalizör parçacıkları ile tüp duvarları arasındaki kısa mesafe ve yüksek gaz hızları reaktör içinde türbülanslı bir akış oluşturur. Türbülanslı akış nedeniyle, ısı transferi çok daha kolaydır. Daha fazla hız kazanmak ve sonunda reaktörün soğutulması için çok önemli olan daha iyi bir ısı transferi elde etmek için çıkan gazın bir kısmının geri dönüşümünün yapılması yaygın bir uygulamadır. Yine de tüpler çok dar olduğundan çok fazla sıcaklık oluşur ve ısı giderimi zorlaşır. Yüksek sıcaklık gradyeni ve basınç farkına sahip olması, atık

katalizörü sistemden uzaklaştırmaya ihtiyaç duyulması ve yüksek yatırım maliyetinin olması ARGE reaktörünün dezavantajlarıdır. Avantajı ise daha kolay çalıştırılabilmesi; katalizör ve ürünler ayrıldıktan sonrasında başka bir ayırım yapmaya gerek duyulmamasıdır.



Şekil 1.1: Fischer Tropsch reaktörleri [5,10]

Çamurlu fazlı reaktörler çok fazlı operasyonlar ve düşük sıcaklıkta çalışma için oldukça uygundur. Katalizör, giren ve çıkan ürünler reaktörde bir karışım halindedir. Katalizör bulamacın içinde çok ince süspansiyon halinde tutulduğundan reaktör içinde izotermal reaksiyon bölgesi elde edilebilir ve katalizörler çok küçük olduğundan dönüşümü artırma eğilimi vardır. Vaks (ürün) seçiciliği yüksek, metan seçiciliği düşüktür. Reaktörün ana sorunu ürünlerdir. Karışımda katalizör ve ürünlerin ayrılması zordur ve bu sırada katalizörler yıpranıp deaktive olabilir. Avantajı ise düşük sıcaklık gradyeni (izotermal sıcaklık), düşük maliyet, kolay katalizör yüklenmesidir.

Çok borulu sabit yatak ve bulamaç faz reaktörleri HTFT için uygun olmadığından, yüksek sıcaklık koşulları için özellikle ticari olarak kullanılmak üzere akışkan yataklı reaktörler geliştirilmiştir. SASOL bu reaktörün geliştirilmesinde önemli çalışmalar yapmıştır. Sirkülasyonlu akışkan yataklı reaktörlerde, katalizör parçacıkları gaz halindeki besleme ile birlikte hareket eder. Herhangi bir küçük katalizör parçacığı siklon tarafından geri dönüştürülür. Sabit akışkan yataklı

reaktörler, sirkülasyonlu yatak reaktörleriyle çok benzer şekilde çalışır. Ancak, tüm katalizör parçacıkları giriş gazına maruz kaldığı için daha yüksek dönüşüm oranları elde edilebilir [10]. Sirkülasyonlu yatak reaktörünün avantajları ise gaz sirkülasyonu için daha az enerji gereksinimi, daha az katalizör yıpranması ile işletme ve bakım kolaylığıdır. Bu avantajlar sayesinde sermaye ve işletim maliyeti daha düşüktür.

Fischer tropesch sentezinde mikroreaktörler

FTS için mikroreaktörler son zamanlarda hem akademik hem de endüstriyel araştırma toplulukları tarafından büyük ilgi görmüştür. Bu reaktörler diğer reaktörlerde gözlenen sorunlara alternatif çözümler sunar. Isı ve kütle transferi mesafelerini düşürerek süreçleri hızlandırmaktadır. Endüstriyel işletmelerde sermaye maliyetlerinde önemli bir düşüş sağlarlar ve adından da anlaşılacağı gibi geleneksel reaktörlere kıyasla reaktör boyutlarında ciddi derecede azalma vardır.

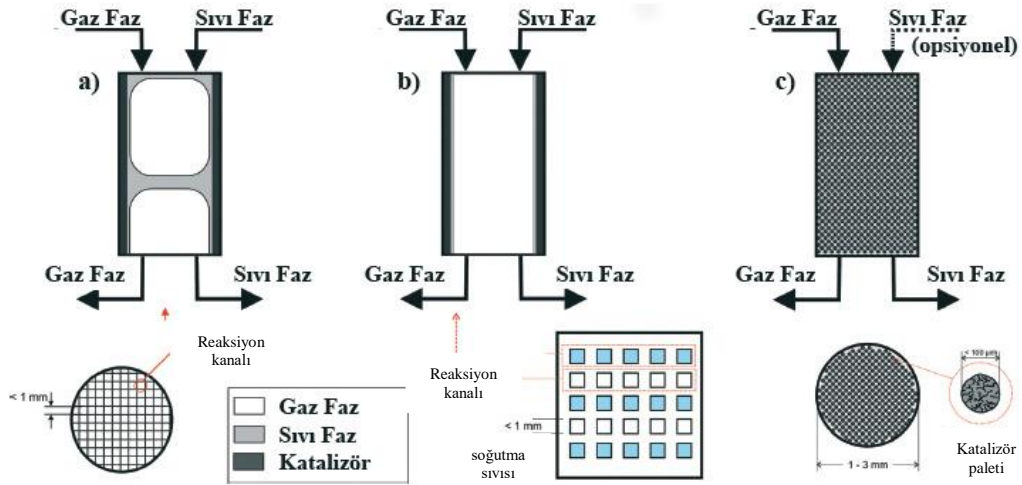
Mikroreaktörlerin temel avantajı, geleneksel sabit yataklı reaktörlerde sorun olan gelişmiş ısı transferidir. Kontrol edilemeyen sıcaklık artışı reaktörün çalıştırılması sırasında katalizör yapısını etkiler. Sıcaklık kontrolü, reaktörün çalıştırılması sırasında özellikle talep edilebilir. Geliştirilmiş ısı transferi nedeniyle, mikroreaktörlerde çok daha yüksek hidrokarbon üretkenliğine sahip daha aktif katalizörler kullanılabilir.

FTS için kullanılan 3 çeşit mini/mikro reaktör sistemi vardır:

- 1.Mikro yapılı reaktörler (monolitler,köpükler)
2. Katalizörün reaktör duvarına kaplandığı mikrokanallar
- 3.Mikro ve mili sabit yatak reaktörler

Mikro yapılı reaktörlerin temel avantajı cm boyutlu konvensiyonel reaktörlerde genellikle sorunlu olan gelişmiş ısı transferinin iyileştirilmiş olmasıdır. Sıcaklık kontrolü başlangıçta çok önemlidir, kontrol edilemeyen sıcaklık artışı katalizör yapısını etkileyebildiği zaman, reaktörün çalıştırılması sırasında sorunlar oluşabilir. İyileştirilmiş ısı transferi nedeniyle, mikro reaktörlerde çok daha yüksek hidrokarbon üretkenliğine sahip daha aktif katalizörler kullanılabilir. Mikro yapılı reaktörler, köpük, monolit gibi yapısal bir desteğin, ince bir katalizör tabakası ile kaplanmasıyla oluşturulur. Katalizör ve reaktör ayrılmaz bir bütün haline gelir. Bu heterojen gaz-sıvı karışımı genellikle Taylor akış düzenini takip eder [12]. Taylor akışı tipik olarak

sıra ile giden gaz kabarcıkları ve bu gaz kabarcıkları arasındaki sıvı slug ile karakterize edilir. Çok ince bir sıvı film tabakası ayrıca gaz kabarcıklarının katalizörle kaplanmış duvarlardan ayırır. Bu, gaz fazından gelen reaktif moleküllerin aktif katalizör yüzeyine ulaşmak için çok kısa bir mesafeye ulaşmak zorunda kalacakları anlamına gelir, bu da çok küçük bir kütle transfer direnci ile sonuçlanır. Benzer şekilde, bu aynı zamanda ısı transfer direnci için de geçerlidir, yani ısı duvardan kolayca çıkarılabilir. Monolitik kanalların bu avantajlarının yanında seramik yapısı nedeniyle ısı transfer verimliliği azdır. Reaktör dışına bir ısı değiştirici koyarak akışkanlar beslenmekte ve akışkan döngüsü ile kullanılabilir. Yapılandırılmış katalizörlerin en büyük dezavantajı düşük hacimli etkinlikleridir. Başka bir deyişle, bu reaktörler, reaktör hacmi başına verimliliklerini sınırlayan daha az miktarda aktif katalizöre sahiptir. Ek olarak, bir Taylor akış rejimi elde etmek için, yüksek sıvı akış hızları gerekebilir yani tam bir Taylor akışı sağlanamaz. Manyetik rezonans ve optik görüntüleme çalışmaları bu durumla ilgili ispatlar sağlamıştır [13-15]. Monolit reaktörlerde çok sayıda FTS çalışması gerçekleştirilmiş ancak çalışmalar genel olarak katalizör ve etkileri üzerine yapılmıştır, gerçekte var olan akış rejimleri ihmal edilmiştir.



Şekil 1.2 : FTS için mikroreaktörlerin şematik gösterimi a) mikro yapılı reaktör
b) mikrokanal reaktörü c) mikro sabit yatak reaktörü

Diğer bir FTS reaktörü mikrokanal reaktörleridir. Mikro yapılı reaktörlerin dezavantajlarını gidermek için çalışılmıştır ve bu nedenle monolitlere çok benzerler. Farkları akış rejimi ve reaktör içine dahil edilen ısı transfer üniteleridir. Mikro kanal reaktörleri, çoğunlukla bloklar halinde sıralanmış, ince bir aktif katalizör tabakası ile

kaplanmış çok sayıda paralel dikdörtgen kanaldan oluşur ve gaz hızla kanalın merkezinden geçerken ,sıvı katalizör duvarı üzerinden laminar olarak akar. Yüzey alanı/hacim oranlarının yüksek olmasından dolayı, geleneksel reaktör teknolojilerine kıyasla kütle ve ısı transfer katsayıları daha yüksektir [16]. Bu durum artan sıcaklık, dönüşüm seviyesi ve basınç gibi en iyi aktiviteyi ve seçiciliği sağlamak için gereken önemli proses koşullarında çalışmayı sağlar. Mikrokanal ve mikroyapılı (monolit) reaktörler, geleneksel reaktörlerle (çamurlu ve sabit yatak) karşılaştırılarak bazı çalışmalar yapılmıştır. Velocys araştırmacıları bu reaktörler için metan seçiciliğini %9 olarak bildirmişlerdir; bu da toz katalizörler ve ince katalizör tabakaları olan monolitler ile çamurlu faz deneylerine benzerdir [17,18]. Guttel ve Turek [19] ise matematiksel modelleme ile reaktörler arasında karşılaştırmalar yapmışlardır. Analizleri reaktör etkinliği ile kütle ve ısı transferinin etkinlik üzerindeki etkileridir. Simülasyon sonuçları, çamurlu reaktörlerin sabit yatağa kıyasla 10 kat daha yüksek bir etkinlik sergilediğini ve daha iyi kütle transfer özellikleri ve izotermal işlem nedeniyle daha az aktif katalizör kütlesi ve reaktör hacmini gerektirdiğini göstermiştir. Ancak iki tip reaktör için de bazı pratik sorunlar vardır. Çamurlu reaktörlerde katalizör ayırma problemi varken , monolit reaktörlerde ısı transferi için yüksek oranda sıvı döngüsüne ihtiyaç vardır. Mikrokanal reaktörlerinin ise bu tür sorunları olmadığı ve önemsiz ısı ve kütle transfer dirençlerinden dolayı çok yüksek reaktör verimliliği gösterdiğini belirtmişlerdir. Almeida ve arkadaşları farklı yapıları katalizörlerin (monolit, mikromonolit ve köpük) performansını inceleyerek, toz katalizör ve mikrokanal blok reaktörlerle karşılaştırdılar [18,20]. Aynı şartlarda metan ve C₂ seçiciliğine göre mikrokanal reaktörlerin yapılandırılmış katalizörlere kıyasla benzer veya daha iyi bir performansa sahip olduğunu bulmuşlardır. Katalizör yüklemesine bağlı olarak mikrokanal reaktörlerde metan seçiciliği %5-18 arasında değişirken, monolit ve köpükte ise bu değer %20 olarak belirtilmiştir.

Kaplanmış FTS mikro reaktörlerinin en önemli dezavantajı düşük katalizör kütlesinin reaktör hacim oranına oranıdır ve düşük hidrokarbon verimi sağlar. Bununla birlikte, zor reaktör duvar kaplama prosedürleri ve kaplama için özel olarak tasarlanmış katalizörlere duyulan ihtiyaç gibi diğer dezavantajlar mevcuttur. Bu nedenle, araştırmacılar mikro ve mili sabit yataklı reaktörlerin (şekil 1.2c) kullanılması olasılığını araştırmışlardır. Bu reaktörlerle ilgili ana sorun, çok küçük katalizör topaklarının kullanılması nedeniyle çok yüksek bir basınç düşüşüdür. Araştırmalar 3

mm çapa kadar kanal boyutu kullanılarak basınç düşüşünün kabul edilebilir seviyede olduğu yönündedir [21]. Son zamanlarda bu tip bir mikroreaktör Velocys Inc tarafından tanıtılmıştır. Katalizörleri kullanma yeteneği, kolay reaktör yüklemesi ve katalizör değiştirme olasılığı lisanslı çamurlu (SASOL reaktörleri) ve çok borulu sabit yatak reaktörlere (SHELL reaktörleri) göre oldukça büyük bir avantajdır [22].

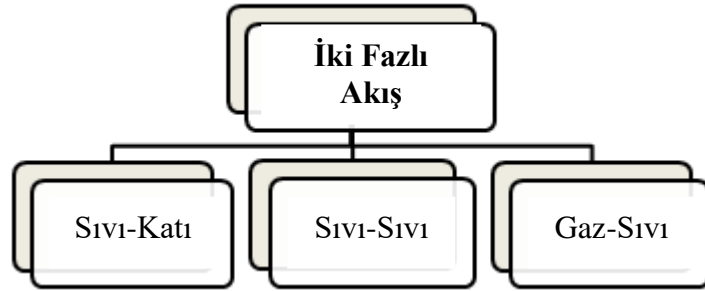
1.2 Motivasyon

Çok verimli ısı ve kütle transferinin ürün seçiciliği açısından önemli olduğu 3 fazlı reaksiyonlarda ürün verimliliğini artırmak için mikroreaktör teknolojilerini kullanmak hem bilimsel çalışmalarda hem de sanayi uygulamalarında önem kazanan bir konudur. Fischer Tropsch sentezinde kullanılan sentez gazı; kömürden, doğal gazdan veya biyokütleden üretilebilir ve hammadde açısından zengindir. Çok iyi ısı ve kütle transferi gerektiren bu sentez, geleceğin enerji sistemlerinde önemli bir rol üstlenmeye adaydır. FT sentezi ekzotermik bir reaksiyondur ve istenmeyen metan dönüşümü sıcaklığa duyarlıdır. Endüstriyel olarak avantajlı olabilmesi için metan dönüşümü az olmalıdır ve bu da ısı ve kütle transferine duyarlı prosesleri gerektirir. Şimdiye kadar borsal sabit yatak ve çamurlu kabarcık kolunu tip reaktörlerde yapılan çalışmalarda istenen veriler sağlanamamıştır. Monolit, mikrokanal ve mini sabit yatak reaktörler konvensiyonel reaktörlere göre avantajlıdır ancak monolit reaktörlerde verimli ısı ve kütle transferi sağlayan Taylor akış rejimine ulaşamaması, mini sabit yataklarda basınç düşüşü ve yataktan kaynaklı istenmeyen akış rejimleri bu reaktörlerin dezavantajı olmaktadır. Bu tezde mini ve mikro kanallarda kontrollü ve tam Taylor akışı sağlayarak; Taylor akış rejimindeki kabarcıklar arasında kalan sıvı slug içindeki girdap oluşumu sayesinde FT için verimli ısı ve kütle transferi sağlayan hidrodinamik incelenecektir. Bu sayede endüstriyel Fischer Tropsch reaktörü geliştirmek için bilgiler elde edilebilecektir.

2. LİTERATÜR ÖZETİ

2.1 İki Fazlı Akış

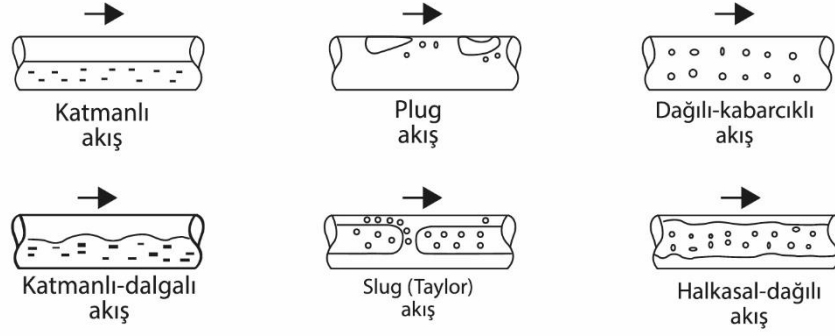
Çok fazlı akış birden fazla fazın (katı,sıvı ve gaz) oluşturduğu bir akış olarak tanımlanır. Doğada ve endüstriyel uygulamalarda pek çok akış örneği iki veya daha fazla fazın karışımı şeklinde bulunur ve en sık rastlanan tipi iki fazlı akıştır. Şekil 2.1’de iki fazlı akış çeşitleri gösterilmiştir. İki fazlı akışların temel karakteristik özelliği iki faz arasında bir ara yüzeyin olmasıdır. Bu ara yüzey gaz-sıvı akışlarında farklı şekiller alır. Akış yönü bu nedenle çok önemlidir. Yatay, eğik, düşey olarak sınıflandırılır. İki fazlı karışımın içerisinden aktığı boru veya kanal içerisindeki iki fazın fiziksel hali “akış rejimi” veya “akış deseni” olarak adlandırılır [23]. İki fazlı akışlarda akış rejimleri ; iki fazın mutlak ve bağıl debilerine, sistem geometrisine, fazlar üzerine etki eden kuvvetler arasındaki etkileşime bağlıdır. Yatay borularda akış rejimi akış yönüne dik etkiyen yerçekimi kuvveti sebebiyle oluşan asimetriklik sonucu düşey akıştan çok daha kompleksir.



Şekil 2.1: İki fazlı akış türleri

2.2 Yatay borularda/kanallarda akış rejimleri

Yatay borularda yerçekimi etkisi dikey borulara göre daha önemlidir çünkü yerçekimi etkisiyle akış asimetrik bir yapı gösterir bu durumda analizi daha kompleks hale getirir. Şekil 2.2’de yatay akış rejimleri gözlenmektedir. Yatay borulardaki akış rejimleri kabarcıklı akış, plug akış, katmanlı akış, dalgalı akış, slug akış ve halkasal akış olarak sınıflandırılmaktadır [25-27].



Şekil 2.2 : Yatay borulardaki akış rejimleri [24]

Katmanlı akış: Yerçekiminden kaynaklanan ayrışma tamamlanmış haldedir. Sıvı borunun alt yüzeyi boyunca akarken gaz üst yüzey boyunca akar. Bu akış rejiminde gaz hızı sıvı hızı üzerine çok az etki yapacak büyüklüktedir.

Katmanlı dalgalı akış: Oldukça yüksek gaz hızlarında gaz-sıvı ara yüzeyinde dalgalar oluşur. Dalgaların oluşumu sıvı yayılımına bağlıdır ve sıvı yayılımı dalga yüksekliğini belirler.

Slug akış: Boru boyunca aralıklı olarak sıvı sluglar geçer. Sluglar bütün boru kesitini kaplar ve sıvıya köpüklü bir karakter veren çok sayıda sürüklenen kurşun şeklinde gaz kabarcıkları içerir.

Plug akış: Slug akıştan farkı kaldırma kuvveti nedeniyle kurşun şekilli kabarcıklar borunun üst yüzeyine daha yakın akma ve boru kesitini daha az işgal etme eğilimindedir.

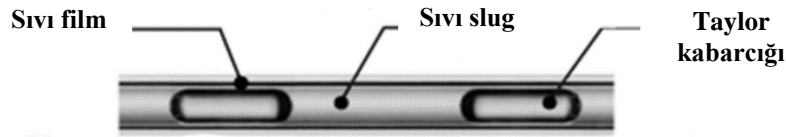
Dağılı kabarcıklı akış: Sıvı fazın tamamının içinde küçük gaz kabarcıkları dağılmıştır ve bu kabarcıklar borunun üst taraflarında toplanma eğilimindedirler. Yüksek sıvı hızında sıvıdaki türbülans kaldırma kuvvetlerini yok sayarak kabarcıkları dağıtacak kadar yeterlidir ve sonucunda dağılı kabarcıklı rejim oluşur.

Halkasal-dağılı akış: Bu akış rejimine film akış rejimi de denmektedir. Tüm boru çapı çevresi boyunca sürekli bir sıvı filmi vardır, film kalınlığı yerçekimi nedeniyle genellikle borunun alt tarafında borunun üst tarafındakinden daha fazladır. Yüksek akış hızlarında, gaz borunun merkezinde akarken, sıvı boru duvarı boyunca film şeklinde akar. Küçük sıvı damlacıkları genellikle gaz faz içerisine saçılır ve gaz kabarcıkları da sıvı film içerisinde dağılır.

2.3 Taylor Akış

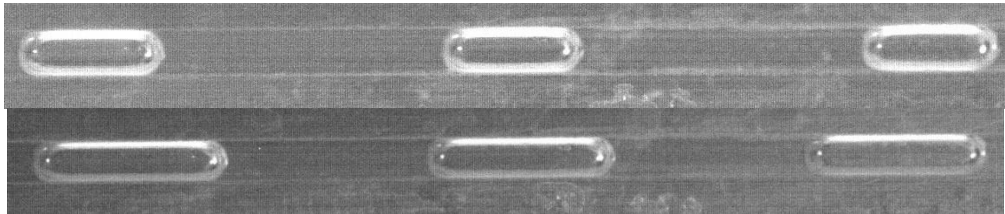
Slug akış olarak da adlandırılan Taylor akışıyla ilgili çalışmalar endüstride ve pratikteki çok sayıda uygulamalarından dolayı son birkaç yılda bir çok araştırmaya konu olmuştur. Geliştirilmiş petrol rafinerisi, minyatür ısı eşanjörleri, mikro ölçekli proses üniteleri, nükleer reaktörler, malzeme işleme teknolojisi, biyoteknoloji sistemleri ve potansiyel uzay uygulamaları gibi birçok önemli uygulamada Taylor akışı çalışmalarına rastlanmaktadır [28].

Taylor akış, mikroreaktörlerdeki gaz-sıvı reaksiyonlarını gerçekleştirmek için kullanılan iki fazlı akış türlerinin en önemlilerinden biridir. Şekil 2.3’de gösterildiği gibi eşdeğer çaplı, kanal çapına çok yakın olan sıvı sluglarla ayrılmış ,uzunlamasına kabarcıklardan oluşan bir gaz-sıvı akış modelidir. Bu özelliğinden dolayı kabarcık dizisi akışı (bubble train flow,BTF) olarak da ifade edilebilir. Kabarcıklar karakteristik kapsüler bir şekli benimser. Kanal kesitini tamamen doldururlar veya tamamına yakın bir şekildedirler; çok ince bir sıvı film onları kanal duvarından ayırır [29].



Şekil 2.3: Gaz- sıvı Taylor akış

Taylor akışında, gaz kabarcığı küresel bir şekle sahip olamayacak kadar büyüktür ve kanal içine sığacak şekilde gerilir (Şekil 2.4). Yüzey gerilimi, kabarcığı kanal duvarına doğru iter ve kabarcık ile duvar arasında sadece ince bir sıvı film kalır. Sluglardan sızamaz ve kabarcıklarla birleşmez. Aynı zamanda şekil 2.5’de gösterilen sıvı slug içinde bir sürekli akış düzenine (girdap oluşumu) neden olur [30].



Şekil 2.4: Minikanalda iki farklı anda gaz -sıvı Taylor akış modelinin görüntüsü



Şekil 2.5: Taylor akışta sluglarda girdap oluşumu [30]

Taylor kabarcıklarının ilk uygulamalardan biri, kabarcıkların sıvı hızını belirlemek için sıvı ile dolu kanallarda hareket ettiği akış ölçümü idi. Ancak daha sonra, kabarcığı duvardan ayıran filmin varlığı ve kabarcık hızının sıvı slug hızına eşit olmadığı anlaşıldı [29]. Slugların önündeki ve arkasındaki kabarcıkların varlığı nedeniyle sıvı slugdaki akış alanı, tek fazlı akış gibi modifiye edilir. Sıvı akış alanının modifikasyonu sonucunda, Taylor akışı, özellikle tek fazlı laminer akışa kıyasla birçok avantaj sunar [31] :

- 1.Yığın sıvının kabarcıklarla ayrılması sıvıda aksel karışımı önemli ölçüde azaltmaktadır .
- 2.Kabarcıkları çevreleyen film, birbirini takip eden iki slug arasındaki iletişimi sağlayan tek araçtır ve çoğunlukla kalınlığı boru çapının yalnızca bir bölümünü oluşturmaktadır. Birim hacme düşen yüksek arayüz alanından dolayı ve film çok ince olduğu için gaz/sıvı arası verimli ısı ve kütle transferi var.
- 3.Sıvı slugların içindeki dolaşım sıvıdan duvara ısı ve kütle transferini ve gazdan sıvıya doğru arayüzey kütle transferini geliştirir [32].

2.3.1. Taylor akış uygulamaları

Taylor akışta uzun kabarcıkların yüzey gerilimin yüksek olması , kimyasal reaktör mühendisliği dışındaki çeşitli uygulamalar için de bu akışın yararlı bir model olarak kabul edilmesini sağlamıştır. Belki de en basit ve en eskisi, bir debimetre olarak bir kabarcık kullanılmasıdır [33]. Kabarcık, kanalın neredeyse tüm kesit alanı boyunca uzandığı için, kabarcığın hızı, kanaldaki akışkanının hızına neredeyse eşittir ve görsel gözlem yoluyla kolayca ölçülebilir.

Sıvı içindeki iyi radyal kütle transferi ve düşük aksel kütle transferi kombinasyonu, Taylor akışını, kütle transferi içeren iki fazlı uygulamalar için uygun hale getirir [34].

Yüksek radyal kütle transferi, kütle transferi sınırlı olabilen çok fazlı hızlı reaksiyonları içerir. Aslında, Taylor akış ile ilgili birçok bilgi, iki akışkan fazın

reaktöre köpük akışı olarak girdiği ve bir Taylor akış modelinde katalizör kaplı kanallardan geçtiği, monolit köpük reaktörü incelemelerinden kaynaklanmaktadır. Taylor akış tek fazlı akış ile karşılaştırıldığında sıvı kromatografi ve tüp şeklindeki diyaliz cihazları için emici duvarlara sahip tüplerin performansı iyileştirilebilir. Kabarcıkları sıvı ortamda kullanıldığında, duvar kayma gerilmesi artışı ve dönüşümlü kabarcık ve slug geçişinden kaynaklanan titreşimlere bağlı olarak mikrofiltrasyon verimliliklerinde iyileşme sağladığı bulunmuştur.

Taylor akışının düşük aksel karışım özellikleri, besleme hattındaki numunelerin etkileşime girmemesi gereken otomatik sürekli akış analizörlerde kullanılmıştır. Bu makinelerde analiz edilmesi gereken numuneler kanala kabarcıklarla ayrılarak enjekte edilir. Alt kısımda, numuneler genellikle spektroskopik araçlar ile analiz edilir. Kabarcıklar numunelerin karışmasını önlediğinden, çok sayıda analiz kesitine sahip uzun kılcal borular, ardışık numunelerin minimum karışımı ile kullanılabilir. Ayrıca, pek çok örnek yüksek hızda analiz edilebilir ve hastanelerde yapılan rutin testlerde sürekli akış analizörleri sıklıkla kullanılır. Aynı durum, Taylor kabarcıklarının reaktörlerde numunelerin sıralı geçişini kolaylaştırdığı yüksek verimli tarama için de geçerlidir. Mikrokanallarda mümkün olan artırılmış ısı ve kütle transfer oranları, reaksiyon kinetiğinin değerlendirilmesine olanak sağlayan kinetik olarak kontrol edilen bir çalışma rejiminin kurulmasını sağlayacaktır [29,30].

2.3.2 Boyutsuz sayılar ve kullanımları

Bir mikrokanaldaki akış rejimi; yerçekimi kuvveti, arayüzey kuvvetleri, atalet(eylemsizlik) kuvveti ve viskoz kuvvetler arasındaki etkileşime bağlıdır. Bu kuvvetlerin etkisi çizelge 2.1’de belirtilen boyutsuz sayılar ile belirlenir.

Re sayısı, ısı transferi ve akışkanlar mekaniği için çok önemli bir boyutsuz sayıdır. Atalet kuvvetlerinin viskoz kuvvetlere oranını belirtir. Düz kanallardaki akışlarda $Re < 2300$ ‘de akış laminar olarak adlandırılırken $Re > 2300$ ‘de türbülent akış vardır. Re sayısı mikrokanallarda akış haritası ve akış rejiminin belirlenmesinde önemli bir parametredir. Taylor akışında genellikle Re sayısının viskoz kuvvetlerin baskın olduğu laminar düzeyde olması istenir.

Bo sayısı , ısı ve kütle transferinin yüksek olduğu mikrokanallarda oldukça etkilidir. Reaksiyon kinetikleri yüksek ısı ve kütle transferinde daha iyi değerlendirilir ve kontrol edilebilir sistem olur ve bu da Bo sayısı ile tanımlanır. Bo sayısı kanal çapına bağlı olduğundan , kanal çapı azaldıkça $Bo \ll 1$ durumu ortaya çıkar ve yerçekimi kuvvetleri

ihmal edilebilir. $1,5 < Bo$ durumunda yüzey gerilim kuvvetleri etkindir atalet ve vizkoz kuvvetler ihmal edilir. $1,5 < Bo < 11$ durumunda yüzey gerilimi, atalet ve vizkoz kuvvetler etkinken $Bo > 11$ durumunda ise yüzey gerilimi ihmal edilir.

Çizelge 2.1: Taylor akışına etki eden boyutsuz sayılar

Boyutsuz Sayı	Formül	Fiziksel Anlamı
Reynolds Sayısı	$Re = \frac{\rho V d}{\mu}$	<u>Atalet kuvvetleri</u> Viskoz kuvvet
Bond (Eötvös) Sayısı	$Bo = \frac{\Delta \rho d^2 g}{\sigma}$	<u>Yerçekimi kuvvetleri</u> Yüzey gerilimi kuvveti
Kılcallık (kapileri) Sayısı	$Ca = \frac{\mu V}{\sigma}$	<u>Viskoz kuvvetler</u> Yüzey gerilimi kuvveti
Froude Sayısı	$Fr = \frac{\rho V^2}{\Delta \rho g d}$	<u>Atalet kuvvetler</u> Yerçekimi kuvvetleri
Weber Sayısı	$We = \frac{\rho V^2 d}{\sigma}$	<u>Atalet kuvvetler</u> Yüzey gerilimi kuvveti

Ca sayısı, viskoz kuvvetlerin yüzey gerilim kuvvetlerine oranıdır ve mikrokannallardaki iki fazlı akışta önemli bir parametredir. Yüzey gerilim kuvveti $>$ yerçekimi kuvveti olduğunda kanallar küçük kabul edilir. Ca sayısı kabarcıkların şeklini belirler. Düşük Ca sayılarında kabarcık şekli yuvarlakken, yüksek Ca sayılarında kabarcıklar mermi şeklini alır [35]. Aynı zamanda Taylor akışında birimsiz film kalınlığı Ca sayısının bir fonksiyonudur.

Fr sayısı, küçük kanallarda yerçekiminin etkinlik düzeyini belirleme amacıyla kullanılır. $Fr < 1$ olması durumunda yerçekimi kuvvetleri akış üzerinde oldukça etkindir.

We sayısı atalet ve yüzey gerilim kuvvetlerinin oranıdır ve Ca ile Re sayılarının fonksiyonudur. Damlacık veya baloncuk oluşumunu belirler. Akışta yüzey gerilimi azalırken fazlar arası momentum transferi artar. $We < 1$ olduğunda yüzey gerilim kuvvetleri baskınken, atalet kuvvetlerinin önemli olduğu durumlarda Re sayısından daha iyi bir karakterizasyon sağlar.

2.3.3 Küçük kanallarda Taylor akış ve hidrodinamiği

Taylor akışında hidrodinamik özelliklerin bilinmesi, bu rejimde çalışan mikrosistemlerin davranışını anlamak ve performansını arttırmak için gereklidir.

Kabarcıkları çevreleyen sıvı film kalınlığı, kabarcık şekli ve hızı, kabarcık ve slug uzunlukları, basınç düşüşü ve sıvı slugdaki akış sirkülasyonu gibi hidrodinamik özellikler, küçük çaplı kanallar için bir çok araştırmacı tarafından incelenmiştir. Dairesel kanallar için bir çok araştırma yapılmasına rağmen , kare kanallar için araştırmalar kısıtlıdır [29].

2.3.3.1 Sıvı film kalınlığı

Bir kanal içindeki uzun bir kabarcığın akışı, akışkanlar mekaniğinde önemli bir konudur. Kabarcıklar, sıvının hızını belirlemek için sıvıyla dolu kanallarda sıklıkla kullanılmıştır. Bazı araştırmacılar [33], ıslatıcı viskoz bir sıvı, bir gaz kabarcığı ile yer değiştirdiğinde kanal duvarında ıslatıcı bir film oluştuğunu gözlemlemiştir. Bu sıvı filmin kalınlığı, katalizör kaplamada, kanal duvarından sıvıya ısı ve kütle transferi gibi birçok uygulamada önemlidir. Sıvı film kalınlığı bir çok araştırmacının konusu olmuş ve çalışmalar sonucu film kalınlığını deneysel olarak tahmin etmek için iki farklı yöntem ortaya çıkmıştır. Doğrudan yöntemlerde, film kalınlığı doğrudan eğri kanal duvarının neden olduğu optik bozulma içermeyen veya optik bozulma için düzeltilmiş yüksek kaliteli görüntüler kullanılarak ölçülür. Dolaylı yöntemlerde ise kabarcık hızı deneysel olarak belirlenir ve daha sonra film kalınlığı süreklilik kullanılarak hesaplanır. Çizelge 2.2’de verilen korelasyonlardan çıkan ortak sonuç sıvı film kalınlığının Ca sayısı ile ilişkili olduğu yönündedir.

Denklem 2.5 düşük Ca sayılarında kullanılır, denklem 2.2 ve 2.4 ile elde edilen sonuçlar denklem 2.1 ile benzer olmakla birlikte daha yüksek sonuçlar verir. Çok düşük Ca sayılarında ise denklem 2.3 film kalınlığı hesaplamak için kullanılır. Denklem 2.1 aralığın geri kalanı için çok düşük Ca sayılarında kullanılabilir.

Atalet kuvvetleri önem kazandığında denklem 2.6 film kalınlığını hesaplamada kullanılabilir. Aynı zamanda kare kanallarda $Ca = 0.002$ civarında aksel film kalınlığının hesaplanmasına bu denklem uyum sağlarken, köşegen film kalınlığını hesaplamak için ise denklem 2.8’ in tahminlere yakın olduğu bulunmuştur [40,42].

Çizelge 2.2 : Film kalınlığı için deneysel korelasyonlar

Boyutsuz film kalınlığı (δ/r)	Ca aralığı	Ölçüm tekniği	Referans
$0.5 Ca^{1/2}$ (2.1)	$5 \times 10^{-5} \leq Ca \leq 3 \times 10^{-1}$	Kabarcıkların hareketi	[33, 36, 37]
$(0.89 - \frac{0.05}{U_G^{1/2}}) Ca^{1/2}$ (2.2)	$7 \times 10^{-6} \leq Ca \leq 2 \times 10^{-4}$	Kondüktometri	[38]
$1.34 Ca^{2/3}$ (2.3)	$10^{-3} \leq Ca \leq 10^{-2}$	Volumetri	[41]
$0.36[1 - \exp(-3.08(Ca^{0.54}))]$ (2.4)	$9.5 \times 10^{-4} \leq Ca \leq 1.9$	Işık Emilimi	[39]
$\frac{1.34 Ca^{2/3}}{1 + 2.5(1.34 Ca^{2/3})}$ (2.5)	$10^{-3} \leq Ca \leq 1.4$	Video kaydı	[40]

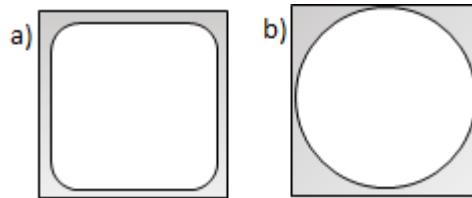
$$\frac{\delta}{r} \propto \frac{Ca^{2/3}}{(1 + Ca^{2/3} - We)} \quad (2.6)$$

$$We = \rho U_G^2 (r - \delta) / \sigma \quad (2.7)$$

$$\frac{d_B}{d_h} = 0.7 + 0.5 \exp(-2.25 Ca^{0.445}) \quad (2.8)$$

2.2.3.2 Kabarcık şekli ve hızı

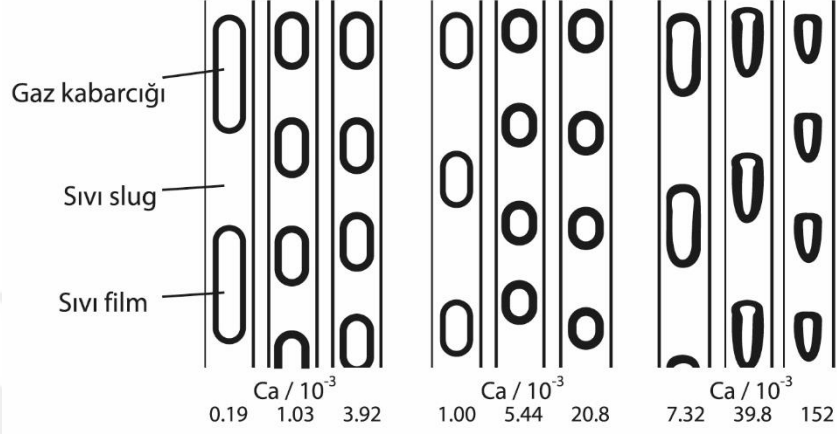
Kare kanallardaki Taylor akışı deneysel ve teorik olarak Kolb ve Cerro tarafından çalışılmıştır [45-47]. İki kabarcık şekli tanımlanmıştır. $Ca < 0.1$ 'de kabarcık aksel simetrik değildir ve köşelerde sıvı bölgeleri kanal kenarlarında ince düz filmler ile ayrılmış halde bırakarak tüp duvarlarına doğru düzleşir (Şekil 2.6 (a)). Daha yüksek Ca 'da aksel simetrik bir kabarcık gözlemlenir (Şekil 2.6 (b)). Thulasidas ve çalışmaları [48] ise kare kanallardaki akış parametrelerini elde etmek için dairesel kılcallarla aynı teorik yaklaşımın kullanılması yönündeydi ve $Ca = 0.04$ 'te iki kabarcık şekli arasındaki geçişin olduğunu belirlediler.



Şekil 2.6 : Kare kanallarda kabarcık şekilleri

Bu çalışmalardan yola çıkılarak düşük Ca sayılarında gaz kabarcığı, uçlarında yarım küre kapaklı bir silindire benzetilebilir. Ca sayısındaki bir artışla kabarcık kuyruğu düzleşir ve Ca sayısının daha da yüksek değerlerinde, kabarcık kuyruğu içbükey bir

şekil alır [35]. Şekil 2.7’de mermi şekilli kabarcıklar görülebilir. Düşük viskoziteli akışkanlarda (yüksek Re / Ca değeri), kabarcık kapağının en boy oranı, yani, uzunluğu artar ve kabarcığın yarıçapı azalır [43]. Yüksek viskoziteli sıvılar için (Re / Ca ’nın düşük değeri), bu etki küçüktür ve en-boy oranında sadece küçük bir değişiklik vardır.



Şekil 2.7 : Farklı Ca sayılarında kabarcık şekillerinin görünümü [44]

Kabarcık hareketi, kabarcık ve sıvı arasındaki relatif hızı veren sayı ile değerlendirilir. Boyutsuz bağıl kabarcık hızı m denklem 2.9 ile tanımlanmıştır.

$$m = \frac{U_G - U_{TP}}{U_G} \quad (2.9)$$

Liu ve ark., tüm deneysel verilerini hem dairesel hem de kare kılcal damarlarla ilişkilendirmiştir ve sıralı kabarcık akışında kabarcık hızının aşağıdaki korelasyonunu türetmişlerdir [49].

$$\frac{U_G}{U_{TP}} = \frac{1}{1 - 0.61Ca^{0.33}} \quad (2.10)$$

$$2 \times 10^{-4} < Ca = \mu_1 U_{TP} / \sigma < 0.39$$

$$U_G = CU_L + U_0 \quad (2.11)$$

Tsoligkas’ın çalışmaları ise [50], denklem 2.11’deki sürüklenme akış modelinin , aşağı doğru akıştaki deneysel kabarcık hızlarını iyi tanımlayabildiğini ve deneysel katsayı olan C parametresinin 1 ile 1.3 arasındaki değerleri aldığını göstermiştir. U_0 değeri kabarcık yükselme hızıdır ve küçük kanallarda yüzey gerilimi etkileri nedeniyle ve slug hızı ile karşılaştırıldığında önemsizdir.

2.2.3.3 Basınç düşüşü

Birim hücredeki toplam basınç düşüşü, 3 ana basınç düşümü bileşeninin toplamından hesaplanabilir. Bunlar; hidrostatik basınç düşüşü (ΔP_{stat}), sıvı akış-ara bölmesindeki basınç düşümü ($\Delta P_{sıvı}$), kabarcık uzunluğu boyunca gerçekleşen basınç düşüşü ($\Delta P_{kabarcık}$)'dür.

$$\Delta P_{UC} = \Delta P_{sıvı} + \Delta P_{stat} + \Delta P_{kabarcık} \quad (2.12)$$

Uzun kabarcıkları ayıran sıvı slugların uzunluğu ; Taylor akışı, minikanalarda kütle transferi, akış kararlılığı ve basınç düşüşü için önemli bir parametredir. Kanallardaki iki fazlı sürtünme basınç düşüşünü (ΔP_f) tahmin etmek için birçok yöntem önerilmiştir. Basınç düşümü ölçümleri hem basit hem de slug uzunluğuna duyarlı olma avantajına sahiptir. Taylor akışında, yüzey gerilimi etkileri viskoz etkiler üzerinde ($Ca \ll 1$) baskındır ve kabarcığın önü ile arkası arasındaki eğrilikteki farklılıklar, slugtaki viskoz kayıpları bakımından önemli olan bir Laplace basınç farkına yol açar. Çalışmalar sonucu denklem 2.13'deki korelasyonun kare kanallarda basınç düşüşü için kullanılabileceğini ancak dairesel kanallar için 16 olan sabit sayının 14.2 olarak alınması gerektiğini ortaya koymuştur [52]. 0.17 değeri simülasyonlar ve deneysel çalışmalar sonucu elde edilen sabit bir değerdir.

$$fRe = \frac{(\Delta p/L_{UC} - \rho g \epsilon_L) d^2}{2\mu U_{TP\epsilon_L}} = 16 \left[1 + \frac{0.17d}{L_S} \left(\frac{Re}{Ca} \right)^{\frac{1}{3}} \right] \quad (2.13)$$

2.2.3.4 Gaz tutma ve gaz boşluk oranı

Kimyasal reaksiyon mühendisliğinde, gaz fazı tarafından işgal edilen birim hücrenin hacimsel oranı spesifik değildir. Bu oran için, dinamik gaz tutma, boşluk oranı ve hacimsel akış hızı gibi farklı terimler her zaman açık bir ayrım ile kullanılmamıştır. Dinamik gaz tutma terimi denklem 2.14 ifade edilmiştir.

$$\beta_G = \frac{U_G}{U_G + U_L} \quad (2.14)$$

Boşluk oranı genellikle bir birim hücrenin temsili bir kanal hacmindeki gaz oranını karakterize eder. İlk yaklaşımda, ϵ_G 'nin gaz homojen boşluk oranı eşitlik ($\epsilon_G \approx \beta_G$) tarafından tutulan dinamik gazla ilgilidir. Farklı birkaç çalışma ise, $\epsilon_G = 0.833\beta_G$ veya daha fazla karmaşık denklem olduğunu göstermektedir [53,54].

Alternatif olarak, boşluk oranı ayrıca gaz kabarcığı ve sıvı slug uzunluklarından, film kalınlığından ve kabarcığın aksel doğrultuda eğriliğinden de hesaplanabilir. Yarı küresel başlıklı silindirik ve uzun gaz kabarcıkları için, aşağıdaki denklem geometriden ortaya çıkar:

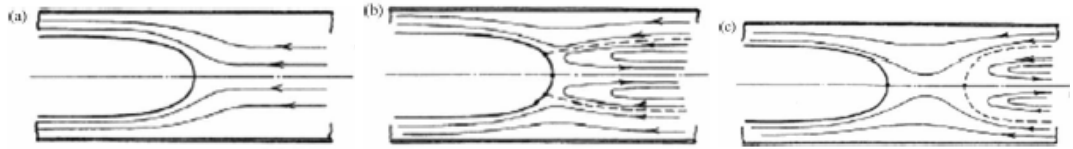
$$\varepsilon_G = \frac{U_G}{U_{TP}} = \frac{(L_B - d_h + 2\delta)(d_h - 2\delta)^2 + 2/3(d_h - 2\delta)^3}{(L_B + L_S) d_h^2} \quad (2.15)$$

$$\varepsilon_G = (L_B - \frac{1}{3}d_h)/(L_B + L_S) \quad (2.16)$$

Sıvı film kalınlığını göz ardı ederek, bu denklem 2.16'daki haline sadeleştirilir. Kimyasal reaktörlerde gaz tutma ve boşluk oranının değişmemesi nedeniyle gaz kabarcık uzunluğu sabit değildir. Bunlar yerine, yeterli reaktör modellemesinde dikkate alınması gereken transfer edilmiş veya dönüştürülmüş gaz moleküllerinin sayısına bağlıken, basınç düşüşü etkileri ihmal edilebilir [55].

2.2.3.5 Sluglardaki akış sirkülasyonu

Taylor akışındaki yoğun kütle ve ısı transferi, temel olarak, kabarcık ve sıvılar arasındaki hız farkından kaynaklanan sıvı kabarcığın içindeki sirkülasyon hareketlerinden kaynaklanmaktadır [51].



Şekil 2.8: Sluglardaki akış sirkülasyonu a) $Ca > 0.5$ bypass akış b) $Ca < 0.5$ kabarcık başında tek durgunluk halkası c) $Ca < 0.5$ kabarcık başında ve slugda iki durgunluk halkası [36]

Yüksek Ca sayısında, kabarcık cephesinde tek bir durgunluk noktası vardır; Bypass akış gözlenir. Kabarcık hızı, tüp merkezindeki maksimum sıvı hızına eşittir. Daha küçük Ca için kabarcık ortalamadan daha hızlıdır, ancak maksimum sıvı hızından daha yavaştır, bu da kabarcık başlığında durgunluk halkası ile sonuçlanır. Bu halkanın dışında, sıvılar yeniden dolaştırılırken sıvılar kabarcığın içinden akar.

2.2.3.6 Kabarcık ve slug uzunlukları

Taylor akışında minikanal reaktörlerinin performansı, gaz kabarcıklarının ve sıvı slugların uzunluğuna bağlıdır, çünkü her iki uzunluk da arayüzey kütle transfer alanlarına etki eder. Ayrıca, sıvı slug uzunluğu, içindeki sirkülasyon ve dolayısıyla kütle transfer katsayısı üzerinde ciddi bir etkiye sahiptir. Her iki uzunluğun önceden belirlenmesi için korelasyonların geliştirilmesinde, gaz-sıvı teması ve sonuçta ortaya çıkan kabarcık oluşturma mekanizmalarına dikkat edilmelidir.

Minikanallardaki kabarcık ve slug uzunlukları temel olarak giriş koşullarına bağlıdır. Çünkü yüzey gerilimi kuvvetleri etkilidir ve Taylor kabarcıkları bir kez oluştuğunda, ayrışma veya birleşme sonucu kanaldaki büyüklüklerinde küçük değişiklikler beklenir [58]. Her ne kadar genellikle bir sıvıda küçük kabarcıkların oluşumu hakkında bol miktarda literatür olsa da, mikrokannallarda Taylor kabarcık oluşumu hakkında çok az çalışma mevcuttur. Gaz kabarcığı ve sıvı slug uzunluklarının hesaplanması için farklı korelasyonlar önerilmiştir [30,49,59-64]. Çizelge 2.3'de hem deneysel verilere hem de sayısal simülasyonlara dayanan bazı korelasyonlar listelenmiştir. Bu korelasyonlar son derece ampiriktir ve sadece belirli bir giriş geometrisi için verileri değerlendirir. Çünkü kabarcık kopma mekanizması giriş geometrisine önemli ölçüde bağlıdır ve geometrilerdeki en ufak bir değişiklik çok farklı kabarcık ve slug uzunluklarına yol açabilir.

Laborie ve ark. [59] , 1-4 mm iç çaplı dikey cam tüp içindeki Taylor akış için $55 < Re < 2000$, $0.13 < Bo < 5$, $1.5 \times 10^{-3} < Ca < 10^{-1}$ değer aralığında kabarcık ve slug uzunluklarını incelemişlerdir. Sıvı olarak su, etanol ve karışımları; gaz olarak ise hava kullanmışlardır. Sıvı yüzeysel hızı (U_L), 0.1 ile 1 m/s, gaz yüzeysel hızı (U_G) ise 0.1 ile 0.74 m/s arasında değişmiştir. Kabarcık uzunluğu , slug uzunluğu ve kabarcık frekansı f , farklı gaz ve sıvı hızlarında kamera kullanılarak alınan görüntülerden elde edilmiştir. Kabarcıklar gözenekli zardan kanala hava enjekte edilerek oluşturulmuştur. Belirlenen Taylor akışı sadece küçük kabarcıklar için gözlenirken, daha büyük olanlarda boruda kabarcık birleşmesi görülmüş ve sıvı sluglar küçük kabarcıklar içermiştir. İncelenen akışkan özellikleri yüzey geriliminin kabarcığı etkilediği, ancak sıvı slug uzunluğunu etkilemediğini ancak sıvı viskozitesindeki bir artışın hem kabarcık hem de slug boylarının azalmasına neden olduğunu göstermiştir. L_B , kanal çapı arttıkça azalmaktadır. U_G ' nin artması L_B ' yi arttırıp L_S 'yi azaltırken;

U_L 'nin ise uzunluklara etkisi olmamıştır. Kabarcık frekansı da araştırılmış, kanal çapı, gaz ve sıvı yüzeysel hızları arttıkça arttığı bulunmuştur. Viskozite ayrıca kabarcık sıklığını da etkiliyormuş gibi görünmekte ancak yüzey gerilimi etkilememektedir.

Çizelge 2.3 : Taylor akışında kabarcık ve slug uzunluklarını tahmin etmek için seçilmiş korelasyonlar

Referans	Model
Laborie ve ark. [59]	$\frac{L_b}{d_h} = 0,0878 \frac{Re_v^{0,63}}{Eö^{1,26}} \quad (2.17)$ $\left(Re_v = \frac{\rho_L U_{TP} d_h}{\mu_L}, \quad Eö = \frac{(\rho_L - \rho_G) d_h^2 g}{\sigma} \right)$
	$\frac{L_s}{d_h} = 3451 \frac{Re'_G^{-1,27}}{Eö^{1,27}} \quad (2.18)$ $\left(Re'_G = \frac{\rho_L U_G d_h}{\mu_L} \right)$
Kreutzer [30]	$L_S = \frac{\beta_L}{-0,00141 - 1,556 \beta_L^2 \ln(\beta_L)} d_h \quad (2.19)$
Liu ve ark.[49]	$L_S = \left(\frac{U_{TP}}{0,088 Re_G^{0,72} Re_L^{0,19}} \right)^2 \quad (2.20)$ $\left(Re_G = \frac{\rho_G U_G d_c}{\mu_G}, Re_L = \frac{\rho_L U_L d_c}{\mu_L} \right)$
Qian and Lawal ve ark. [61]	$L_B/d_h = 1,637 \varepsilon_G^{0,107} (1 - \varepsilon_G)^{-1,05} Re_v^{-0,075} Ca^{-0,0687} \quad (2.21)$ $L_S/d_h = 1,637 \varepsilon_G^{-0,893} (1 - \varepsilon_G)^{-0,05} Re_v^{-0,075} Ca^{-0,0687} \quad (2.22)$ $L_{UC}/d_h = 1,637 \varepsilon_G^{-0,893} (1 - \varepsilon_G)^{-1,05} Re_v^{-0,075} Ca^{-0,0687} \quad (2.23)$
Shao ve ark. [60]	$L_B = \left(1 + 0,57 \frac{u_G}{u_L} \right) d_h \quad (2.24)$ $L_S = \left(1 + 0,57 \frac{u_G}{u_L} \right) d_h \left(\frac{1 - \varepsilon_G}{\varepsilon_G} \right) \quad (2.25)$

Kreutzer [30] slug uzunluğunun deneysel olarak ölçülen sürtünme faktörlerinden hesaplanabileceğini öne sürdüler. Monolit reaktörlerde oluşan slug uzunlukları için yaklaşımı doğruladılar. 1.5 mm ve 2.3 mm çapındaki dikey tüpte aşağıdan yukarıya akış çalışmışlardır. Su, dekan ve tetradekan kullanarak hava ile iki fazlı akış rejimi oluşturulmuştur. Sistemin doğru çalışması sadece sıvı basınç düşüşü ölçümleri yapılarak doğrulanmıştır. Aşağıdan besleme yapılan Taylor akışının kararsız olduğu

iyi bilinmektedir ancak sistemde kararlı duruma ulaşıldığında, kabarcık ve sıvı slug uzunlukları 30-60 saniye boyunca ölçülmüş ve ardından basınç düşüşü, gaz hızı ve sıvı hızı kayıtları yapılmıştır. U_L ve U_G , 0.03 ile 0.4 m/s arasında değişmiştir. Bu çalışmada geliştirilen korelasyon, slugların kanal çapının 10 katından daha kısa olması durumunda deneysel basınç düşüşü verilerinden slug uzunluklarının hesaplanabileceği yönündedir.

Liu ve ark. [49], gaz ve sıvının bir T-bağlantısının karşıt taraflarına sokulduğu dairesel ve kare kanallarda deneysel verilere dayanarak bir korelasyon elde etmek için kütle transfer katsayısının slug uzunluğuna bağımlılığını kullandılar. Çalışmada bir gaz kabarcığı ve hemen ardındaki slug bir birim hücre olarak kabul edilmiş ve tüm birim hücrelerin aynı uzunluğa sahip olduğu varsayılmıştır. Kullanılan gaz faz hava, sıvı faz ise su, etanol, ve bir yağ karışımıdır (hafif parafin yağı ve hidrokarbon yağı). Hidrolik çaplar 0.9-3 mm, $U_L = 0.008-0.5$ m/s ve $U_G = 0.008-0.7$ m/s'dir. Elde edilen deneysel veriler olumlu görünüyordu ancak literatürdeki diğer korelasyonlarla karşılaştırıldığında farklılıklar görüldü (denklem 2.18,2.19).

Qian and Lawal ve ark. [61] CFD 2D ANSYS-FLUENT paketi kullanarak 148 sayısal simülasyon sonucu elde ettiler. Bu pakette, iki fazlı akışkan akışını simüle etmek için akışkan hacmi modeli (VOF) kullanılır. Sistem sıvıları su ve farklı oranlarda gliserol, etil alkol, su çözeltileri olarak belirlendi ve gaz olarak havanın özellikleri alındı. U_L ve U_G değerleri 0.01–0.25 m/s olarak belirlendi. $15 < Re < 1500$, $0.09 < \epsilon_G < 0.91$ ve $0.000278 < Ca < 0.01$ değer aralığında incelemeler yapıldı. Taylor akışta T-girişinde kabarcık ve slug uzunluklarının hesaplanmasında 0.25-1 mm arasında değişen kanal genişlikleri için korelasyonlar önerdiler. Daha büyük kanal çapları (2.0 ve 3.0mm) için belirtilen korelasyonların geçerli olmadığı sonucuna vardılar[65] Giriş konfigürasyonunun kabarcık ve slug uzunlukları üzerindeki önemi kabul edilerek, iki akışkan ya bir T-kavşağı vasıtasıyla ana kanala ayrı ayrı getirildi ya da önceden karıştırıldı. Ön karışımın derecesine bağlı olarak farklı sonuçlar elde edildi; girişte iyi karıştırılan kabarcık ve slug uzunlukları daha kısa oldu. Ayrıca T giriş yönünün ve giriş kanallarının boyutunun uzunlukları etkilediği bulundu. Genel olarak, girişteki küçük karıştırma bölgeleri kısa kabarcıklar ve slugları destekledi. Kanal büyüklüğü ile gaz ve sıvı yüzeysel hızları uzunlukları etkilerken, yüzey gerilimi ve sıvı viskozitesinin uzunluk üzerinde neredeyse hiçbir etkisi yoktu.

Korelasyon, kabarcık ve slug uzunluklarının esas olarak gaz tutma oranı tarafından belirlendiğini, Re ve Ca sayılarının az bir etkiye sahip olduğunu göstermiştir.

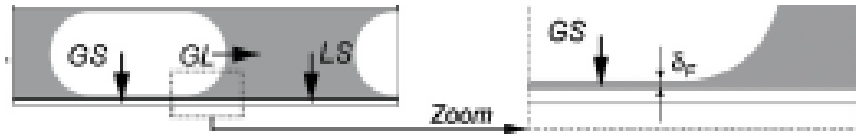
Shao ve ark. [60], Taylor kabarcığı oluşum mekanizması ve $U_G < 0.04$ olduğu durumda kılcal kanallarda ortaya çıkan kabarcık büyüklüğüne gaz ve sıvı hızlarının, sıvı özelliklerinin, temas açısının, gaz ağzı boyutunun ve duvar kalınlığının etkisini CFD kullanarak incelemişlerdir. Çalışmalarda $U_G = 0.01-0.033$ m/s ve $U_L = 0.01-0.020$ m/s'dir. 0.11/0.21 mm; 0.34/0.64 mm boyutunda iki gaz nozülüne sahip ortak akış girişli 1 mm'lik kılcal boru kullanmışlardır. Temas açıları 60° ve 180° 'dir. Gaz fazı hava ve sıvı fazı su,oktan ve yarı oktan olmak üzere 3 farklı kimyasaldır. Kabarcık oluşumu 3 aşamalı bir mekanizmayı takip ederken, oluşum sırasında kabarcığın şekli küresel şekilden sapmıştır. Kabarcık uzunluklarının artan U_G ve azalan U_L ile arttığı; artan nozül büyüklüğü ve nozül duvarı kalınlığı ile arttığı bulunmuştur. Akışkan özelliklerinden, yüzey geriliminin kabarcık büyüklüğü üzerinde yoğunluk ve viskoziteden daha büyük bir etkiye sahip olduğu elde edilen sonuçlar arasındadır. Kabarcık boyutları sayısal olarak faz fraksiyonu veya yüzeysel faz hızlarının oranlarını içeren literatür korelasyonları ile uygun sonuçlar vermiştir. Ancak giriş kabarcık ağzı boyutları ve kabarcık boyutlarını etkilediği tespit edilen iki fazın temas açısı, korelasyonlarda dikkate alınmaz ve gözlemlenen tutarsızlıklardandır.

2.4 Taylor Akışta Kütle Transferi

Son yıllarda kütle transfer işlemleri tarafından kontrol edilen hızlı kinetik ile reaksiyon işlemlerini yoğunlaştırma potansiyeli nedeniyle Taylor akışına artan bir ilgi vardır. Yüksek kütle transfer hızlarının yanı sıra, bölümlere ayrılan akış rejimi, sıvı-film arası temas süresini kontrol edebilme ve düşük basınç düşüşü avantajları sunar. Taylor akışı çok düzenli ve iyi tanımlanmış bir yapıya sahip olsa da, bu rejim içinde toplu transfer çok karmaşıktır. Çünkü birkaç transfer adımı üst üste gerçekleşir. Genel olarak, gaz fazı için üç etkileşimli kütle transfer basamağı düşünülür:

- (a) gaz-sıvı kütle transferi: gaz moleküllerinin gaz kabarcıklarının kapakları yoluyla sıvı sluga aktarılması, $k_{GL} a_{GL}$
- (b) Sıvı-katı kütle transferi: çözünmüş gaz moleküllerinin sıvı sluglardan katı kataliste aktarılması, $k_{LS} a_{LS}$

(c)Gaz-katı kütle transferi: gaz moleküllerinin gaz kabarcıklarından katı kataliste gaz kabarcık çevresindeki ince sıvı film yoluyla aktarılması, $k_{GS} a_{GS}$



Şekil 2.9: Taylor akışta farklı kütle transfer basamakları [44]

En basit yaklaşımda, bu aktarım adımları arasındaki olası tüm çakışma ve etkileşim göz ardı edilir. İlk aşamaya paralel olarak ve genel kütle transferi için aşağıdaki ifade kullanılabilir:

$$k_{GLS}a_{GLS} = k_{GS}a_{GS} + \left(\frac{1}{k_{GL}a_{GL}} + \frac{1}{k_{LS}a_{LS}} \right)^{-1} \quad (2.26)$$

Burada, birim kanal hacmi başına belirli alanlar tanımlanmıştır, spesifik yüzey alanı olarak adlandırılan arayüzey alanlar (a), hidrodinamik parametrelerden gaz kabarcığı uzunluğu, sıvı slug uzunluğu, sıvı film kalınlığı kullanılarak kolaylıkla hesaplanabilir. Çizelge 2.4'te bu alanların tanımları ve denklemleri belirtilmiştir.

Çizelge 2.4 : Fazlar arası spesifik yüzey alanı hesaplamaları

Kütle transferi	Denklem	Tanım
Gaz-sıvı arası	$a_{GL} = \frac{4(d_h - 2\delta_F)^2}{d_h^2(L_B + L_S)} \quad (2.27)$	Kabarcıkların küresel kapaklarının spesifik alanı
Sıvı-katı arası	$a_{LS} = \frac{4(L_S + d_h - 2\delta_F)}{d_h(L_B + L_S)} \quad (2.28)$	Slug ile temas halinde olan kanal duvarının spesifik alanı
Gaz-katı arası	$a_{GS} = \frac{4(L_B + d_h - 2\delta_F)}{d_h(L_B + L_S)} \quad (2.29)$	Kabarcıkları ayıran ince film ile temas halindeki kanal duvarının spesifik alanı

Denklemler genellikle kabarcıkların yarı küresel başlıklara sahip olduğu varsayımıyla uygulanır.

Genel gaz-sıvı kütle transferi, gaz moleküllerinin kabarcık kapaklar yoluyla kabarcıktan sıvı sluga aktarılması ile veya kabarcıklardan kabarcığı çevreleyen sıvı filme moleküllerin aktarılması ile olur. Genel anlamda kabarcıklardan sıvı filme

dođru olan ktle transferi baskındır, kabarcık kapaklardan sluga olan transfer daha az etkilidir. Film ve sıvı slug arasındaki maddenin aktarımı sadece difzyon ile gerekleşir, ünkü her iki bölgenin de birbiriyle karışmadığı düşünlmektedir[56,57]. Bu nedenle, yarı kresel kabarcık kapaklı Taylor akışın genel gaz-sıvı ktle transferi ařağıdaki gibi formle edilebilir:

$$\begin{aligned}
 k_{GL}a_{GL} &= [k_{GL}a_{GL}]_{cap} + [k_{GL}a_{GL}]_{film} \\
 &= k_{GL,cap} \frac{4(d_h-2\delta)^2}{d_h^2(L_B+L_S)} + k_{GL,film} \frac{4(d_h-2\delta)(L_B-(d_h-2\delta))}{d_h^2(L_B+L_S)} \quad (2.30)
 \end{aligned}$$

Verilen denklemlerin kabarcık ve slug temas srelerine gre ekstrapolasyonuna dikkat edilmelidir. Eđer uzun sre temas sreleri gerekleşirse, film gaz halindeki bileşenle doyurulabilir ve sonu olarak ktle transferi iin aktif hale gelir. Bu durumda, film bölgesi kısmen ktle transferine katkıda bulunur ve daha dřk genel ktle aktarım katsayıları elde edilmesine neden olur [44].

3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1 Materyal Özellikleri

Bu çalışmada mikrokana1 içerisinde Taylor akış rejiminde hidrodinamik davranışları incelemek için gaz kaynağı olarak karbonmonoksit (CO) ve hidrojen (H₂), sıvı kaynağı olarak ise n-olefin kullanılmıştır. H₂ gazı renksiz, kokusuz , zehirsiz ancak oldukça yanıcı ve parlayıcı bir gazdır. Linde firmasından temin edilen kimyasal %99,999 saflıktadır. CO ise renksiz, kokusuz ve yanıcı özelliklerinin yanısıra zehirli bir gazdır. Clienti'den ithal edilen kimyasal Asal Gaz firmasından temin edilmiştir ve %99,997 saflıktadır. n-olefin ise Total Oil Türkiye'den alınmıştır. Kullanılan gazların özellikleri çizelge 3.1'de; sıvı kimyasal özellikleri ise çizelge 3.2'de listelenmiştir.

Çizelge 3.1: Deneylerde kullanılan gazların özellikleri

Gaz	Molekül ağırlığı (g/mol)	Viskozite (kg/ms)	Yoğunluk (kg/m ³)
Karbonmonoksit	28.01×10^{-3}	0.0000174	1.156
Hidrojen	2.02×10^{-3}	0.0000088	0.0827

Çizelge 3.2: Deneylerde kullanılan sıvının özellikleri

Sıvı	Yüzey gerilimi (kg/s ²)	Viskozite (kg/ms)	Yoğunluk (kg/m ³)
n-Olefin	0.021	0.000495	795

Kanal çapı 1 mm x 1 mm olan L, Y ve T tipi giriş bağlantılarıyla tasarlanan kare kanal plexiglass reaktörlerin uzunlukları 440 mm'dir. Mikroreaktörlere beslenen gaz ve sıvının akış kontrolü şekil 3.1'de gösterilen BRONKHORST markalı mini-cori akış ölçerlerle sağlanmıştır. PIV tekniği için görüntüler DANTEC Speed Sense 1040 kamera (şekil 3.2) ile elde edilmiş olup daha net görüntüleme için 30 watt'lık ışık kaynağı deney düzeneğine eklenmiştir.



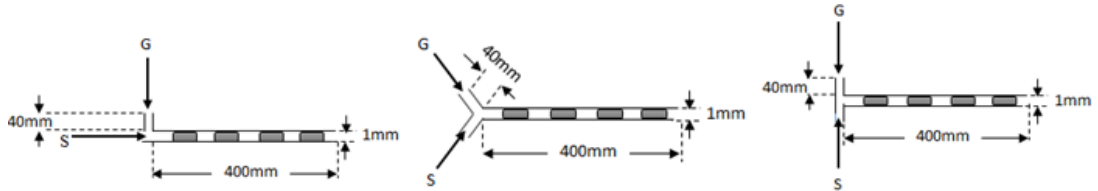
Şekil 3.1 : Bronkhorst mini-cori akış kontrolörü



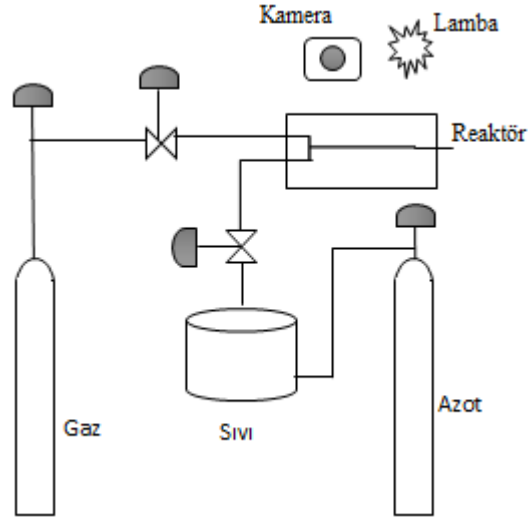
Şekil 3.2 : Dantec Speed Sense 1040 kamera

3.2 DeneY Düzenegİ

DeneYler L,Y ve T tipi mini kanal reaktörlerde gerçekteşirilmiş olup reaktörler şekil 3.3'de şematize edilmiştir. Gaz ve sıvıların hızları akış kontrolörleri ile ayarlandıktan sonra tanklardan reaktöre gönderilmiştir. Sıvının reaktöre iletilebilmesi için azot gazı yardımı ile sürüklenme yapılmıştır. Reaktördeki akışı görüntüleyebilmek için, reaktörün karşısına kamera konmuştur ve daha iyi görüntüleme yapılabilmesi için yanına ışık kaynağı eklenmiştir. DeneYlerin gerçekteşirildiğİ düzenek şekil 3.4'de verilmiştir.



Şekil 3.3 : Sırasıyla L,Y,T tipi minikanal reaktörler



Şekil 3.4 : Deney düzeneği

3.3 Deneilerin Yapılışı

Minikanallarda Taylor akış hidrodinamiği incelemeleri için deneyler, kanalların L, Y ve T tipi olduğu 3 farklı reaktörde yapılmıştır. Sıvı akışkan n-olefin kullanılarak CO ve H₂ olarak 2 farklı gazın kanallar içindeki hareketi incelenmiştir. Deneyler oda koşullarında 20°C sıcaklıkta yapılmış olup, sistem basıncı 2-3 bar aralığındadır. Gaz ve sıvı akışkanlar akış kontrolörleri ile sisteme ml/dk cinsinden gönderilmiştir. Labview programı kullanılarak gerekli birim çevirmeleri yapılmıştır sıvı hızı aralığı 20-200 mm/s (10 farklı hız) ve gaz hızı aralığı 1-90 mm/s (11 farklı hız) olarak belirlenmiştir ve hepsi için ayrı ayrı deneyler yapılmıştır. Micro-PIV tekniği çalışılarak görüntüleme yapılmıştır. 3 farklı kanal ve 2 farklı gaz – sıvı reaktör sistemi için görüntüler 100-300 Hz frekansında kaydedilmiştir ve her bir sistem için 500 görüntü alınmıştır. 440 mm'lik reaktörün 179 mm'lik kısmından alınan görüntülerden kabarcık ve sıvı slug uzunlukları ölçülmüştür.

4. DENEYSEL BULGULAR VE TARTIŞMA

4.1 Deneysel Bulgular

L,Y ve T tipi minikanal reaktörlerde, iki farklı gaz- sıvı sisteminde Taylor akışta farklı gaz ve sıvı yüzeysel hızlarında oluşturulan kabarcık ve slugların ortalama uzunlukları ölçülmüştür ve hızlara karşı ölçülen uzunlukların görüntüleri Ek-A'daki çizelgelerde gösterilmiştir. $U_G=1-90$ mm/s ve $U_L=20-200$ mm/s aralığında gönderildiğinde ölçülen uzunluklar yardımıyla sistemlerin Ca, Re, Bo sayıları ile gaz ve sıvı boşluk oranları ϵ_G ve ϵ_L (hold-up) hesaplanmış Çizelge 4.1'de gösterilmiştir. Hesaplanan boyutsuz sayı değerleri Taylor akış oluşabilmesi için uygun aralıktadır. Aynı zamanda Ca değerleri şekil 2.8b ile uyumludur ve bu durum Taylor akışta önemli hidrodinamik parametre olan sirkülasyonun, slug içinde iyi bir şekilde gerçekleştiğinin göstergesidir.

Kullanılan farklı hızlar ve literatür modellerinde kullanılan parametreler doğrultusunda; gerekli veriler MATLAB programında kodlamalar yapılarak girilmiş, sonuçta karşılaştırılan literatür modeline göre teorik uzunlukların yanı sıra bir çok farklı veri de (sabit katsayılar, üstel değerler, korelasyon değerleri) elde edilmiştir. Karşılaştırmaların yanı sıra ,sıvı ve gaz hızları ile hesaplanan tüm veriler, MATLAB programına girilmiş, yazılan kodlamalar sonucu kullanılacak parametreler elde edilmiştir. Bu parametreler önemli hidrodinamik özelliklerden olan slug ve kabarcık uzunluğu hesaplamalarında yeni bir model oluşturmak için kullanılmıştır.

Çizelge 4.1: Deneylerde hesaplanan boyutsuz sayı değerleri

Gaz	Ca Sayısı	Re Sayısı	Bo Sayısı	ϵ_G
H ₂	0,002-0,005	40-465	0,3713	0,0049-0,8182
CO	0,002-0,005	40-465	0,3708	0,0049-0,8182
Uygun aralık	<0,02	0-2000	<3,37	0-1





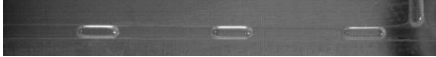



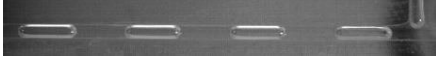

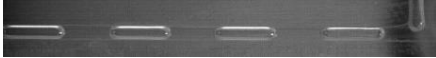
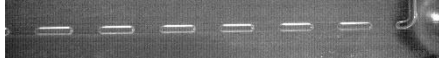
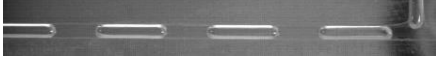
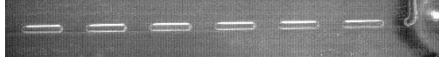
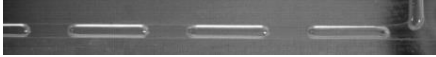
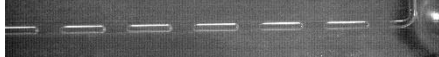

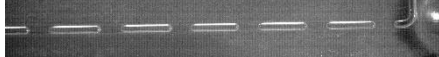

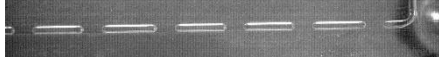
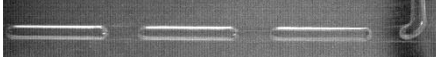
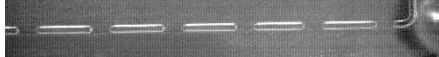
4.2 Deneysel Bulguların Değerlendirilmesi

4.2.1 Gaz ve sıvı yüzeysel hız etkisi

Kabarcık ve slug uzunluklarının belirlenmesinde gaz ve sıvı yüzeysel hızları oldukça büyük bir etkiye sahiptir. H₂ ve CO gazları ile olefin sıvısı ile oluşturulan sistemde hızlara göre kabarcık ve slug uzunlukları Şekil 4.1 ile Çizelge 4.2 ve 4.3'te örneklendirilmiştir.

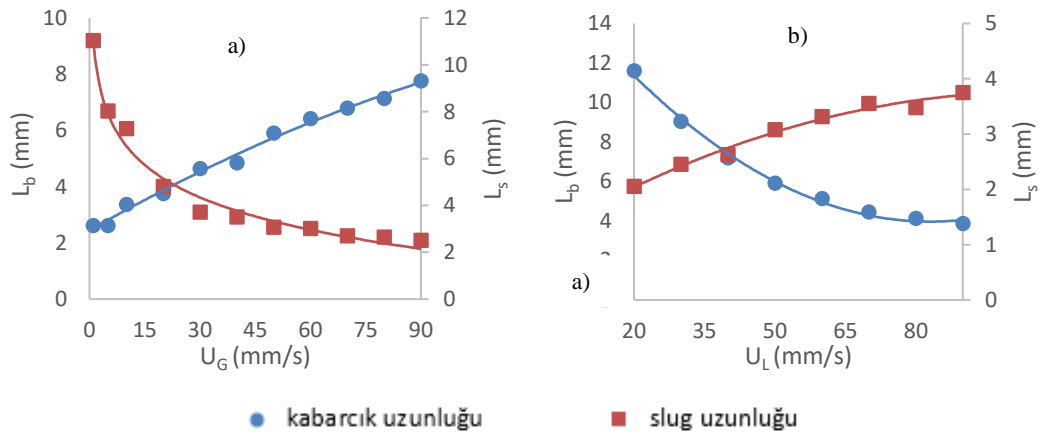
Minikanallarda Taylor akışı ile oluşturulan sistemlerde, elde edilen deney bulgularına göre sabit sıvı hızında gaz hızının artmasına bağlı olarak slug uzunluğunun azalıp kabarcık uzunluğunun arttığı, sabit gaz hızında ise sıvı hızının artmasıyla slug uzunluğunun artıp kabarcık uzunluğunun azaldığı açıkça gözlenmiştir.

Çizelge 4.2: Sabit U_L 'de U_G 'ye göre kabarcık ve slug uzunlukları

U_G (mm/s)	H ₂	CO
1		
5		
10		
20		
30		
40		
50		
60		
70		
80		
90		

Çizelge 4.3: Sabit U_G 'de U_L 'ye göre kabarcık ve slug uzunlukları

U_L (mm/s)	H ₂	CO
20		
30		
40		
50		
60		
70		
80		
90		
100		
200		

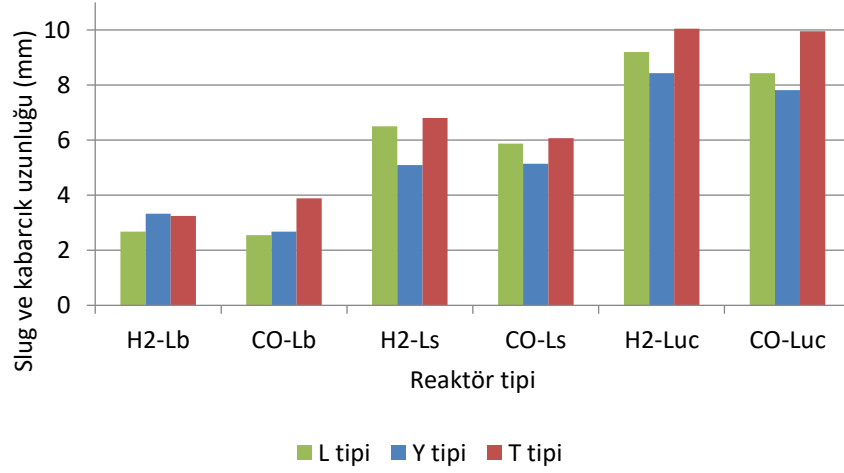


Şekil 4.1: a) Sabit U_L 'de gaz hızına bağlı L_B ve L_S b) Sabit U_G 'de sıvı hızına bağlı L_B ve L_S

4.2.2 Reaktör tipinin etkisi

Kabarcık ve slug uzunlukları giriş geometrisine büyük ölçüde bağlıdır. Giriş kısmındaki etkileşim ne kadar iyi olursa slug uzunluğu da o kadar kısa olur. Bu da verimli bir akış oluşturulmasını sağlar. Bu çalışmada L,Y,T tipindeki kanallarda

deneyler yapılmış ve uzunluklar incelenmiştir. Üç farklı giriş koşulunda farklı gazlarla oluşturulmuş sistemlerde oluşan kabarcık, slug ve buna göre birim hücrelerin uzunluklarının reaktör tipiyle değişimi Şekil 4.2’de verilmiştir. Kabarcık uzunluğu için en uygun kanal T olarak görülürken, slug uzunluğu için ise Y tipi kanaldaki sonuçlar daha iyidir. Ancak kanalların geometrisi korelasyonlarda dikkate alınmamıştır ve bu da gözlenen tutarsızlıklar olarak gösterilebilir.



Şekil 4.2: Reaktör tipine göre L_B , L_S ve L_{UC} 'nin karşılaştırılması

Taylor akışında her birim hücre kendi içinde ayrı reaktör davranışı sergiler. Bu yüzden kanal boyunca birim hücre sayısı arttıkça iyi bir akış sistemi elde edildiği söylenebilir. Bu da birim hücrelerin küçük olması gerektiği anlamına gelir. Yapılan deneyler sonucunda eş besleme hızlarında reaktör tipine göre birim hücre uzunluklarında farklılıklar gözlenmiştir. Y tipi reaktörde diğerlerinden daha kısa birim hücreler oluşmuştur ve en uygun reaktör tipi olarak belirtilebilir.

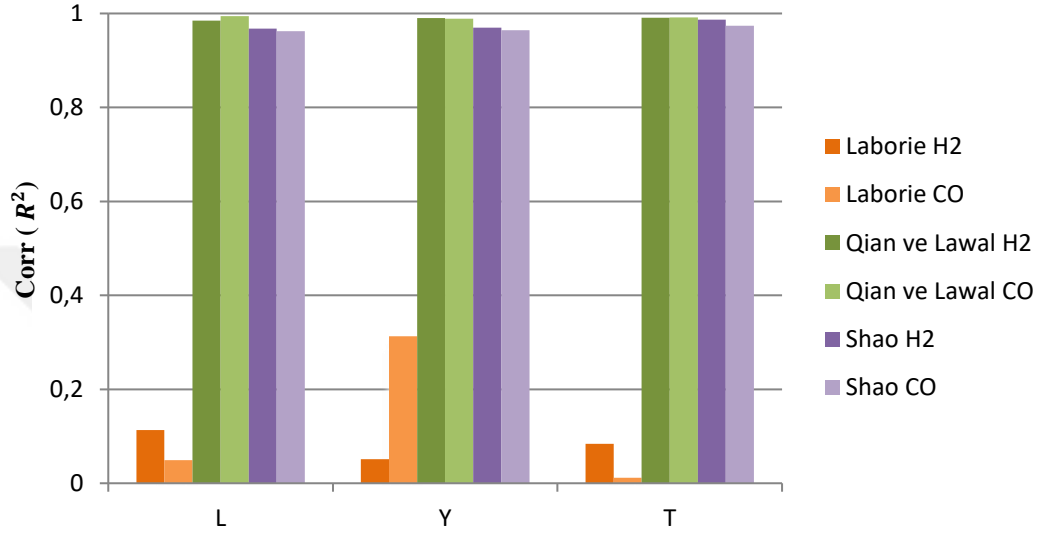
4.2.3 Gaz türünün etkisi

CO-olefin ve H₂-olefin ikili gaz-sıvı Taylor akış sistemlerinde aynı kanallarda slug ve kabarcık uzunluklarının yaklaşık değerlerde olduğu görülmüştür. Buna bağlı olarak slug ve kabarcık uzunluğunda kullanılan gazın etkinliği deneysel parametrelerin yanı sıra teorik hesaplamalar sonucu incelenmiştir.

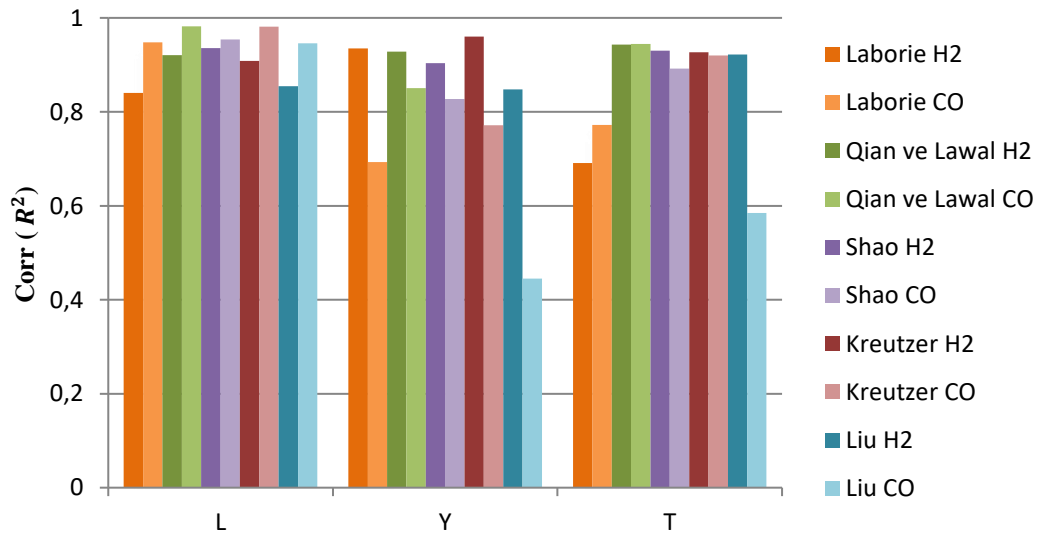
4.3 Literatür Modelleri ve Deneysel Bulguların Karşılaştırılması

Yapılan deneyler sonucunda hesaplanan kabarcık ve slug uzunlukları, literatürde geliştirilmiş ve sıklıkla kullanılan Laborie, Kreutzer, Qian ve Lawal, Shao modelleri

(denklem 2.17-2.25) ile karşılaştırılmıştır. Bu çalışmalara göre elde edilen sabit katsayılar ve üstel değerler ile doğruluk oranları (R^2) değerleri Ek B'deki çizelgelerde verilmiştir. L,Y ve T tipi reaktörlerde yapılan çalışmalar sonucu elde edilen deneysel verilerin, mevcut literatür korelasyonlarının uyarlanmasıyla hesaplanan teorik verilerle uygunluğunun karşılaştırılması kabarcık ve slug uzunlukları için sırasıyla Şekil 4.3 ve Şekil 4.4'te gösterilmiştir.



Şekil 4.3: $L_{Bdeneyssel}$ ve $L_{Bteorik}$ uygunluklarının literatür modellerine göre karşılaştırılması



Şekil 4.4: $L_{Sdeneyssel}$ ve $L_{Steorik}$ uygunluklarının literatür modellerine göre karşılaştırılması

Deney sonuçlarının Laborie ve ark. [59] tarafından önerilen korelasyonla uyuşmadığı görülmektedir. Kabarcık uzunlukları teorik ile büyük farklılıklar gösterirken slug uzunluklarının farklılıkları daha azdır. Shao ve ark. [60] modellemesinde uygunluğa bakıldığında tüm kanal tiplerinde kabarcık uzunluğu için iyi sonuçlar elde edilmiş ancak aynı durum slug uzunluğu için geçerli olmamıştır. Kreutzer [30]' in slug uzunluğu için önerdiği korelasyon, çalışmalar sonucunda reaktör tipi ve gaz türüne göre etki göstermiştir. Y tipi kanal H₂ sisteminde , L tipi kanal CO sisteminde iyi sonuçlar vermiştir. T tipi kanalda ise sonuçlar benzerdir. Liu ve ark. [49]'nın modellerinde ise uygunluğa gaz türünün etki ettiği gözlenmektedir. H₂ corr değerleri yüksekken, CO için değerler oldukça düşüktür. Tüm şartlar göz önüne alındığında deney sonuçlarıyla en iyi uyumu Qian ve Lawal [61] kabarcık ve slug uzunlukları modellemesi vermiştir. L ve T tipi reaktörlerde modellerin CO gazına uygunluğu daha yüksek iken; Y tipi reaktörde H₂ gazının modele uygunluğu daha fazladır. Bu durumda bağlayıcı tipi akış hidrodinamiği üzerinde etkili bir parametredir. Gazın türü ve model korelasyonları arasında belirgin bir farklılık yoktur.

Qian and Lawal korelasyonları aynı zamanda boyutsuz Ca sayısını içeren tek korelasyondur ve bu da yüzey geriliminin slug ve kabarcık uzunlukları hesaplamasına katılması gerektiği ve önemli bir gösterge olduğunu ortaya çıkarmıştır. Literatürdeki modellemeden (denklem 2.21-22) yola çıkılarak MATLAB'da hesaplanan yeni ön sabitler ve üstel değerleri L_B için çizelge 4.4 ve L_S için çizelge 4.5'te verilmiştir.

Çizelge 4.4: L_B için ön sabitler ve üstel değerlerin yeni değerlerle karşılaştırılması

$L_B / d_h = a \varepsilon_G^b (1 - \varepsilon_G)^c Re^d Ca^e$	a	b	c	d	e
Qian ve Lawal	1,6370	0,1070	-1,050	-0,0750	-0,0687
H ₂ -L	1,9845	0,1702	-1,0218	-0,1101	-0,1708
H ₂ -Y	1,9749	0,1309	-1,2769	-0,1344	-0,1927
H ₂ -T	1,9965	0,2118	-0,9532	-0,0102	-0,1019
CO-L	1,6839	0,1207	-1,1732	-0,1253	-0,1788
CO-Y	1,8653	0,1082	-1,1968	-0,1405	-0,1814
CO-T	1,8719	0,0257	-1,0202	-0,0736	-0,1573

Kabarcık ve slug uzunluğu modellemesinde Re_v değerlerinin düşük olması , sıvının viskozitesi ve yoğunluğunun uzunluk hesaplamalarında daha az etkiye sahip

olduğunu gösterir. Ca sayısı ve buna bağlı yüzey gerilimi ise hesaplamalarda oldukça etkilidir ve kabarcık uzunluğundaki etkisi slug uzunluğundan daha fazladır.

Çizelge 4.5: L_S için ön sabitler ve üstel değerlerin yeni değerlerle karşılaştırılması

$L_S/d_h = a\varepsilon_G^b(1-\varepsilon_G)^cRe^dCa^e$	a	b	c	d	e
Qian ve Lawal	1,6370	-0,8930	-0,050	-0,0750	-0,0687
H ₂ -L	1,5374	-0,4236	0,5337	0,1138	-0,0223
H ₂ -Y	1,0536	-0,2760	0,7122	0,0190	-0,1869
H ₂ -T	1,2144	-0,9046	0,1864	-0,0714	-0,1329
CO-L	1,2708	-0,5342	0,3486	-0,0094	-0,1194
CO-Y	1,2838	-0,1197	1,1594	-0,0017	-0,2274
CO-T	2,0012	-0,1351	0,6582	0,1641	-0,0068

4.4 Minikanallarda Taylor Akışta Uzunluk Hesaplamaları için Yeni Bir Model

Deney verilerinden yola çıkılarak bütün parametreler değerlendirilmiş, Qian ve Lawal modelinin verilerle uygunluğu göz önüne alınmış, MATLAB’da kodlamalar oluşturulmuş ve gaz hızı,sıvı hızı, gaz hold-up,sıvı hold-up,Re ve Ca içeren yeni bir model önermesi yapılmıştır. Modeller kabarcık ve slug uzunlukları için sırasıyla Çizelge 4.6 ve 4.7’de gösterilmiştir. Gaz tipinin etkisini tespit etmek için modele boyutsuz özkütle terimi de eklenmiş ancak etkisiz olduğu görülmüş ve ihmal edilmiştir.

Çizelge 4.6: L_B için önerilen yeni modellemeler

Reaktör Tipi	Gaz Türü	Model	Corr (R^2)
L tipi reaktör	H ₂ Gazı	$L_B = 8,6798 U_L^{-1,2825} Ca^{-0,0274} Re_v^{0,8771} \varepsilon_G^{0,0796}$ (4.1)	0,9746
	CO Gazı	$L_B = 9,3746 U_L^{-1,3616} Ca^{0,0210} Re_v^{0,9742} \varepsilon_G^{0,0631}$ (4.2)	0,9915
Y tipi reaktör	H ₂ Gazı	$L_B = 10,9266 U_L^{-1,4106} Ca^{-0,0017} Re_v^{1,0106} \varepsilon_G^{0,0977}$ (4.3)	0,9893
	CO Gazı	$L_B = 9,9601 U_L^{-1,3366} Ca^{0,0138} Re_v^{0,9516} \varepsilon_G^{0,0950}$ (4.4)	0,9873
T tipi reaktör	H ₂ Gazı	$L_B = 6,2724 U_L^{-0,9570} Ca^{0,006} Re_v^{0,7630} \varepsilon_G^{0,2317}$ (4.5)	0,9895
	CO Gazı	$L_B = 6,4619 U_L^{-1,0466} Ca^{-0,0112} Re_v^{0,8007} \varepsilon_G^{0,0236}$ (4.6)	0,9909

Çizelge 4.7: L_S için önerilen yeni modellemeler

Reaktör Tipi	Gaz Türü	Model	Corr (R^2)
L tipi reaktör	H ₂ Gazı	$L_S = 1,3968 U_G^{-0,0584} Ca^{-0,0784} Re_v^{0,0325} \epsilon_L^{-0,4805}$ (4.7)	0,9012
	CO Gazı	$L_S = 1,6322 U_G^{-0,1606} Ca^{-0,1608} Re_v^{-0,0157} \epsilon_L^{-0,435}$ (4.8)	0,9723
Y tipi reaktör	H ₂ Gazı	$L_S = 2,4977 U_G^{-0,4194} Ca^{-0,1341} Re_v^{0,2008} \epsilon_L^{0,1948}$ (4.9)	0,9461
	CO Gazı	$L_S = 2,6238 U_G^{-0,4964} Ca^{-0,1173} Re_v^{0,2411} \epsilon_L^{0,0390}$ (4.10)	0,8111
T tipi reaktör	H ₂ Gazı	$L_S = 5,0736 U_G^{-1,0361} Ca^{0,1010} Re_v^{0,8008} \epsilon_L^{-0,1454}$ (4.11)	0,9686
	CO Gazı	$L_S = 1,9984 U_G^{-0,1814} Ca^{-0,0149} Re_v^{0,2811} \epsilon_L^{0,4098}$ (4.12)	0,9326

Korelasyon formunun uygunluğu Ca ve Re sayılarını içermesi dolayısıyla viskozite, yoğunluk ve yüzey gerilimi kavramlarının etkili olduğu kanısına varılmasının yanı sıra, bazı araştırmacılar tarafından önerilen değiştirme mekanizmasını sağlamasından kaynaklanmaktadır [66]. Bu yaklaşıma göre gaz ve sıvı; bir diğeri engellenene kadar kanala akar. Bu sayede slug ve kabarcık oluşumu gerçekleşir. Aynı zamanda slug uzunluğu ϵ_L , kabarcık uzunluğu ise ϵ_G ile orantılıdır.

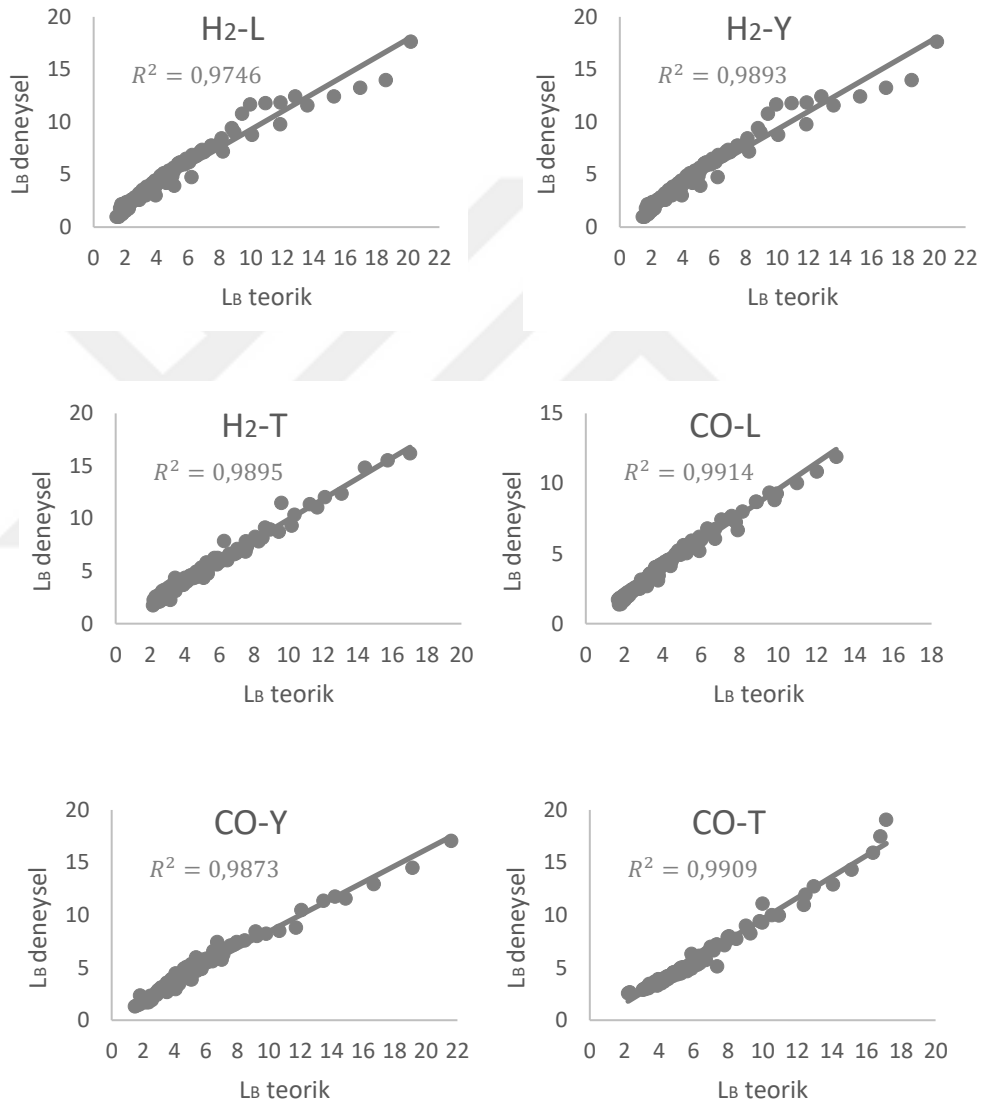
Kabarcık ve slug uzunluğuna yüzeysel hızların etkisinin yanı sıra bu modeldeki etkin parametre reynolds sayısıdır. Re sayısı Re_v olarak tanımlanmış olup çizelge 2.3'de verilmiştir ve gazın sıvı içerisinde çözündüğünü, hız olarak ortak hareket ettiklerini, aynı zamanda viskozite ve yoğunluk kavramlarının oldukça önemli olduğunu ifade eder. Bir diğere parametre olan Ca sayısının etkinliği Re sayısına göre daha düşüktür ancak yüzey gerilimi içeren bu terimin ihmal edilebilir olduğu anlamına gelmemelidir.

Oluşturulan yeni modellerden hesaplanan uzunluklar gaz hızına göre değerlendirilmiş, EK-C'de şekillerde gösterilmiştir. Bu çalışmalara göre kabarcık uzunluğu L_B , gaz hızındaki artışla artarken, sıvı hızındaki artışla azalır. Slug uzunluğu L_S ise gaz hızındaki artışla azalırken, sıvı hızındaki artışla artar.

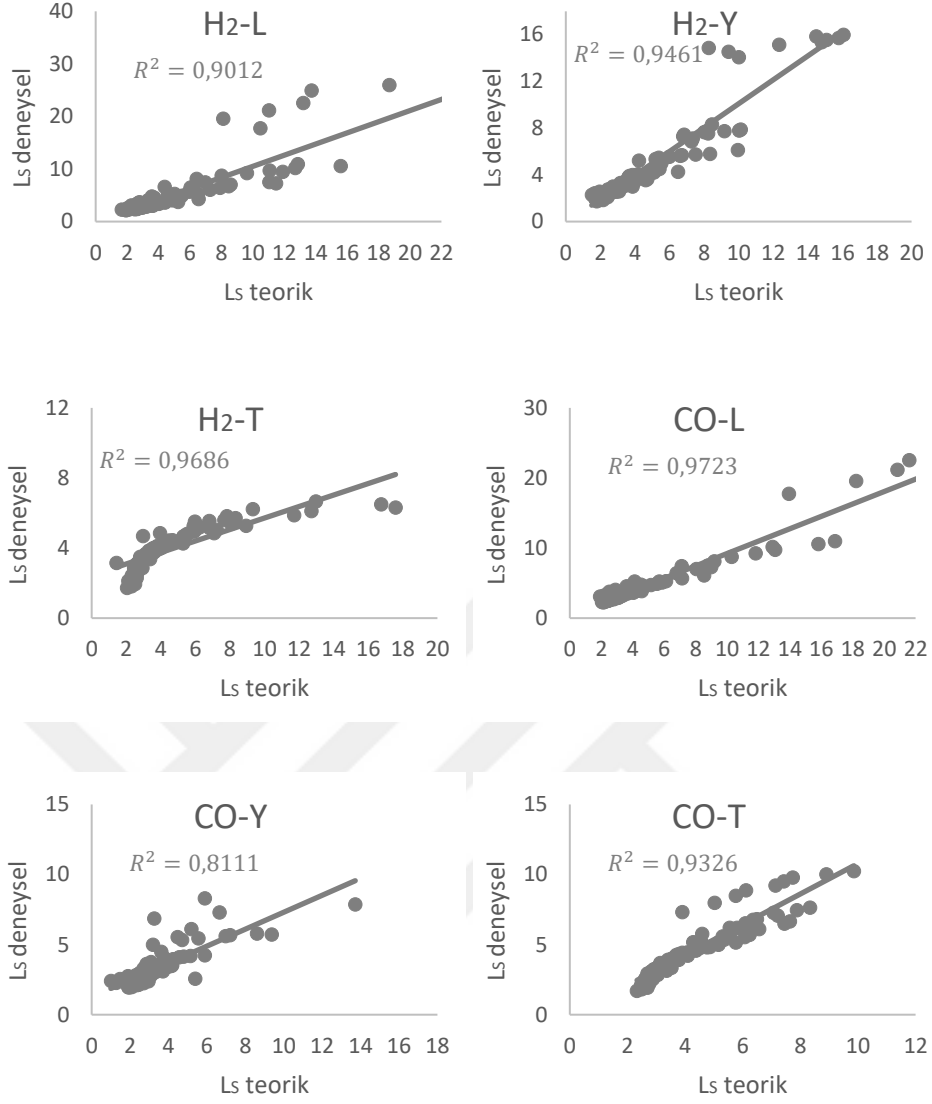
4.4.1 Yeni modelin uygunluk değerine göre değerlendirilmesi

Elde edilen deneysel veriler ile modellerden hesaplanan teorik verilerin uygunluğu Şekil 4.5 ve Şekil 4.6'daki grafiklerde şematize edilmiştir. Kabarcık uzunluğu için önerilen modellemelerin uygunluğuna bakıldığında slug uzunluğuna göre daha iyi

sonular elde edilmiřtir. Kabarcık uzunluęu iin elde edilen korelasyonların slug uzunluęu iin bulunanlardan daha yksek olduęu grlmektedir. Slug uzunluęu iin uygunluklara bakıldıęında reaktr tipine gre farklılıklar gzlenmektedir. Bu durum slug uzunluęunun giriř geometrisine kabarcık uzunluęundan daha fazla baęlı olduęunu gsterir ve oluřturulan yeni modelin literatrdeki alıřmalarla [61] uyum saęladıęı sylenilebilir.



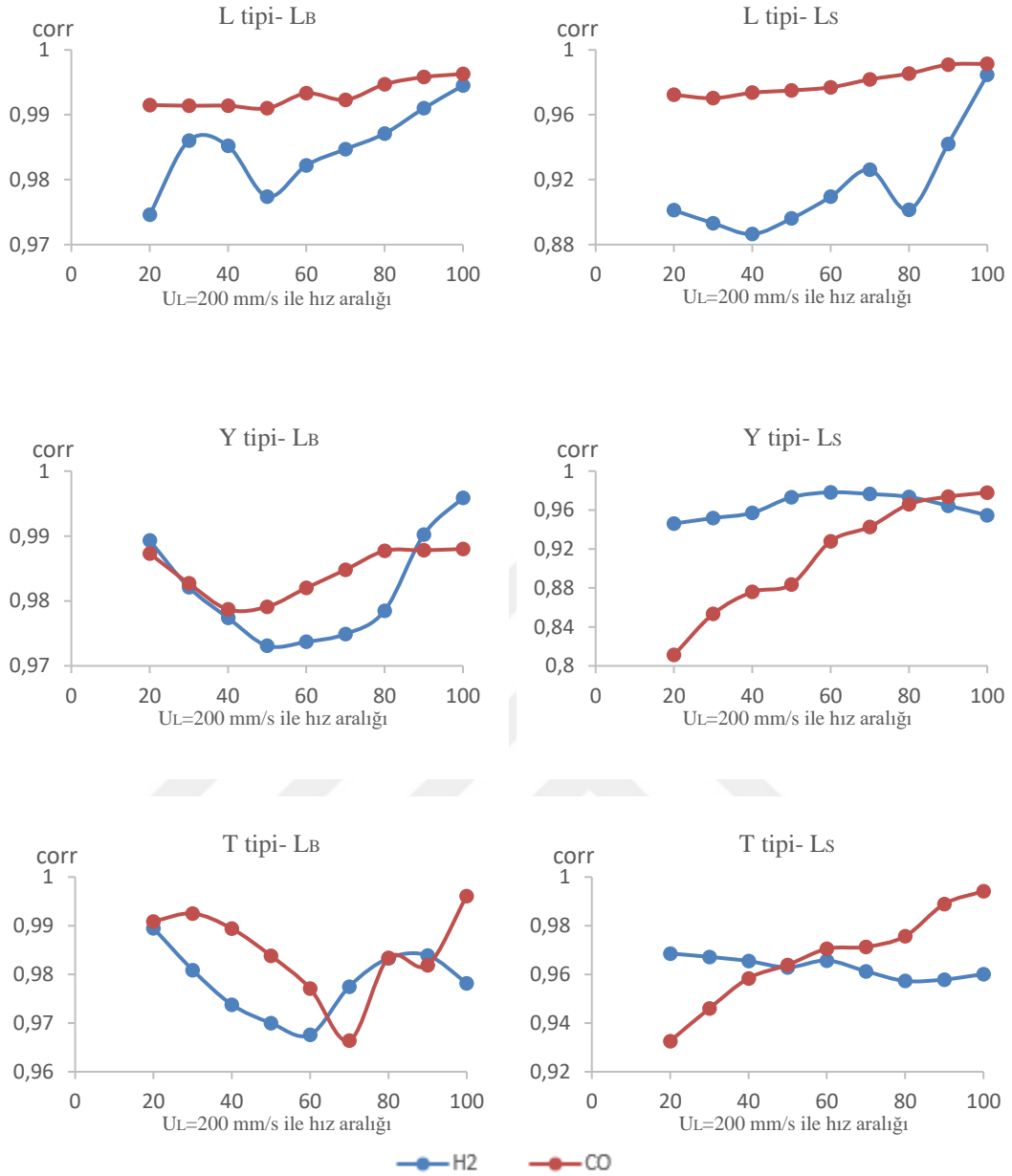
řekil 4.5: Kabarcık uzunluklarının deneysel ve teorik karřılařtırılması



Şekil 4.6: Slug uzunluklarının deneysel ve teorik karşılaştırılması

4.4.2 Yeni modelin hıza ve kırılma noktasına göre değerlendirilmesi

Çizelge 4.6 ve 4.7’de oluşturulan modeller 20-200 mm/s sıvı hızı aralıklarında çalışılmıştır ancak farklı değer aralıklarında çalışıldığında R^2 değeri daha yüksek sonuçlar elde edilebileceği gözlenmiştir. Bu da hidrodinamik davranışta belirli bir hızdan sonra kırılma noktası olduğunu ortaya çıkarmaktadır. Bu kırılma noktasını tespit etmeye yönelik bazı çalışmalar yapılmıştır ve Şekil 4.7’de kırılma noktası aralıklarını gösteren grafikler elde edilmiştir.



Şekil 4.7: Farklı sıvı hızı aralıklarında R^2 değerleri

Kabarcık uzunluğu için uygunluk değerleri $U_L=20-200$ mm/s hız aralığında yüksektir ve çizelge 4.6'da önerilen denklemler kullanılabilir. Slug uzunluklarının hesaplanmasında ise H_2 gazı için L tipi, CO gazı için Y tipi reaktörlere göre önerilen modellerin uygunluğunda sapmalar vardır ve bu nedenle kırılma noktaları belirlenmiş, düşük ve yüksek hızlar için yeni modeller önerilmiştir. çizelge 4.8'de belirtilen denklemlerle gösterilmiştir.

Çizelge 4.8: Kırılma noktalarına göre yeni modeller

Reaktör Tipi	U_L aralığı	Model	Corr (R^2)
L tipi reaktör H ₂ Gazı	20-100	$L_S = 1,2710 U_G^{-0,0061} Ca^{-0,0274} Re_v^{0,0646} \epsilon_L^{-0,5540}$ (4.13)	0,9130
	100-200	$L_S = 2,1759 U_G^{-0,3281} Ca^{-0,3941} Re_v^{-0,098} \epsilon_L^{-0,1905}$ (4.14)	0,9846
Y tipi reaktör CO Gazı	20-80	$L_S = 2,0520 U_G^{-0,7518} Ca^{-0,0331} Re_v^{0,6220} \epsilon_L^{-0,2224}$ (4.15)	0,9474
	80-200	$L_S = 2,6214 U_G^{-0,5059} Ca^{-0,5766} Re_v^{-0,219} \epsilon_L^{-0,3162}$ (4.16)	0,9659
T tipi reaktör CO Gazı	20-50	$L_S = 1,8422 U_G^{-0,1231} Ca^{-0,0787} Re_v^{0,1576} \epsilon_L^{0,3138}$ (4.17)	0,9515
	50-200	$L_S = 2,0542 U_G^{-0,1590} Ca^{-0,0445} Re_v^{0,2369} \epsilon_L^{0,8572}$ (4.18)	0,9639

4.4.3 Yeni modelin reaktöre göre değerlendirilmesi

Belirtilen modeller sistemde kullanılan gazların cinsine göre oluşturulmuştur ancak L, Y ve T tipi sistemlerde gaz özelliklerinden bağımsız genel bir denkleme ihtiyaç duyulmuştur. Yapılan çalışmalar ve yazılan MATLAB kodları sonucunda farklı reaktör tiplerinde kullanılacak 3 ayrı model elde edilmiş ve aşağıdaki çizelge 4.9'da belirtilmiştir.

Çizelge 4.9: Reaktör tipine göre yeni modeller

Reaktör Tipi	Model	Corr (R^2)
L tipi	$L_S = 1,5019 U_G^{-0,1068} Ca^{-0,1169} Re_v^{0,0099} \epsilon_L^{-0,4617}$ (4.19)	0,9293
	$L_B = 8,960 U_L^{-1,3158} Ca^{-0,0056} Re_v^{0,9197} \epsilon_G^{0,0731}$ (4.20)	0,9789
Y tipi	$L_S = 2,5186 U_G^{-0,4390} Ca^{-0,1307} Re_v^{0,2082} \epsilon_L^{-0,1459}$ (4.21)	0,9198
	$L_B = 10,792 U_L^{-1,4053} Ca^{0,0066} Re_v^{0,9981} \epsilon_G^{0,0782}$ (4.22)	0,9705
T tipi	$L_S = 2,1267 U_G^{-0,1717} Ca^{-0,0510} Re_v^{0,2494} \epsilon_L^{0,6105}$ (4.23)	0,7394
	$L_B = 9,3746 U_L^{-1,1527} Ca^{0,0212} Re_v^{0,8761} \epsilon_G^{-0,0105}$ (4.24)	0,9768

Reaktör tipine göre oluşturulan modeller kabarcık uzunluğu için yüksek uygunluk oranları verirken , slug uzunluğu için aynı durum geçerli değildir. Bu da slug uzunluğunun hesaplanmasında gaz tipinin etkisinin olduğu anlamına gelir ve reaktör tipine göre gaz türünden bağımsız denklem 4.19, 4.21, 4.23 ile yapılan

hesaplamlarda sapmalar gözleneceđi anlamına gelir. Kabarcık uzunluđu hesaplamalarında ise reaktör tipine göre denklem 4.20, 4.22, 4.24 kullanılabilir.



5. SONUÇ VE ÖNERİLER

L,Y,T tipi minikanallarda CO-olefin ve H₂-olefin sistemlerinde Taylor akış koşullarında hidrodinamik incelenmiştir. Farklı hızlarda sistemlere gönderilen gaz-sıvı akışında kanallarda kabarcık ve slug oluşumu yüksek çözünürlüklü PIV kamera ile görüntülenmiş ve uzunlukları ölçülmüştür.

Uzunluklara reaktör kanal tipi, gaz tipi, gaz ve sıvı yüzeysel hızın etkisi incelenmiştir. Gaz hızının artmasıyla slug uzunluğu azalır ,kabarcık uzunluğu artmışken; sıvı hızının artmasıyla slug uzunluğu artıp, kabarcık uzunluğu azalmıştır. Kanal giriş geometrisinin slug uzunluğu üzerinde daha büyük bir etkisi vardır. Birim hücre olarak değerlendirme yapıldığında akış için en uygun kanal Y tipi olarak belirlenmiştir. Gaz türünün ise uzunluklara etkisi azdır , slug üzerindeki etki kabarcığa göre daha büyüktür ancak ihmal edilebilir düzeydedir.

Uzunluk ve hız ile elde edilen verilerden boyutsuz sayılar hesaplanmış , Taylor akış için uygun koşullar olduğu doğrulanmıştır. U_G artıkça Ca , Re sayıları ve gaz tutma (ϵ_G) artarken; U_L artıkça Ca , Re sayıları ve sıvı tutma (ϵ_L) değerleri artar. Bu da yüzey gerilimi, yoğunluk ve viskozite etkilerinin minikanallardaki akışta önemli olduğu anlamına gelir. Bu değerlerinde herhangi bir değişme söz konusu olmadığından yerçekimi etkileri gözardı edilebilir.

Boyutsuz sayılar ve diğer parametreler Matlab yazılımı kodlamaları kullanılarak sık kullanılan literatür modelleri için yeni katsayı ve üstel sabit değerler oluşturulmuş ve modellerle karşılaştırılmıştır. Sonuçlarla en iyi uyumu Qian ve Lawal [61] ($R^2=0,80-0,99$) tarafından önerilen korelasyon vermiştir.

Deney verilerinden ve elde edilen teorik sonuçlardan yola çıkılarak yeni bir model önermesi yapılmıştır. Modellerin uygunluk oranlarına bakılmış, slug uzunluklarının hesaplanması için önerilen modellerde belirli hızlarda kırılma noktaları gözlenmiş ve buna göre düşük hız ve yüksek hızda kullanılmak üzere farklı modeller geliştirilmiştir. Ardından gaz tipinden bağımsız kanal geometrisine göre kullanılabilecek 3 farklı model oluşturulmuştur.

Tüm modellemelerden yola çıkılarak uzunluklar üzerinde yüzeysel hızların yanı sıra Re_V sayısının dolayısıyla sıvının yoğunluk ve viskozitesinin oldukça büyük bir

etkiye sahip olduđu sđylenbilir. Slug uzunluđunda sıvı tutma etkisi oldukça fazladır ancak kabarcık uzunluđunda gaz tutma ekisi daha dđřüktür. Ca etkisi slug uzunluđunda kabarcık uzunluđuna oranla daha yüksektir. Bu da yüzey gerilimi ile ilişkilendirilir.

Minikanalarda gerçekleştirilen bu çalışma Fischer Tropsch sentezi için geliştirilecek reaktör özelliklerine ve sistem koşullarına yol gösterecektir. Bu sayede uygun reaktör tasarlanıp yüksek ısı ve kütle transferi sağlayan reaksiyonlar gerçekleştirilebilir.



KAYNAKLAR

- [1] **Dry, M. E.** (2002). The fischer–tropsch process: 1950–2000. *Catalysis Today*, 71(3-4), 227-241.
- [2] **Schulz, H.**, (1999). Short history and present trends of Fischer-Tropsch synthesis, *Applied Catalysis A: General*, 186, 3-12.
- [3] **Sie, S. T., Senden, M. M. G., & Van Wechem, H. M. H.** (1991). Conversion of natural gas to transportation fuels via the shell middle distillate synthesis process (SMDS). *Catalysis Today*, 8(3), 371-394.
- [4] **Xiong, W. E. N., Zhang, Y. H., LIU, C. C., Hong, J. P., Liang, W. E. I., Yao, C. H. E. N., & LI, J. L.** (2017). Performance of hierarchical ZSM-5 supported cobalt catalyst in the Fischer-Tropsch synthesis. *Journal of Fuel Chemistry and Technology*, 45(8), 950-955.
- [5] **Tanuğur, Y.** (2012). *Direct synthesis of paraffins from combined fischer tropsch and hydrocracking* (Doctoral dissertation).
- [6] **Dry, M.E.**, (2004), Chemical concepts used for engineering purposes, *Studies in Surface Science and Catalysis*, 152, 196-257.
- [7] **Iqbal, S., Davies, T. E., Morgan, D. J., Karim, K., Hayward, J. S., Bartley, J. K., ... & Hutchings, G. J.** (2016). Fischer Tropsch synthesis using cobalt based carbon catalysts. *Catalysis Today*, 275, 35-39.
- [8] **Sadeqzadeh, M., Karaca, H., Safonova, O. V., Fongarland, P., Chambrey, S., Roussel, P., ... & Khodakov, A. Y.** (2011). Identification of the active species in the working alumina-supported cobalt catalyst under various conditions of Fischer–Tropsch synthesis. *Catalysis Today*, 164(1), 62-67.
- [9] **Hussain, S. T., Mazhar, M., & Nadeem, M. A.**, (2009). Suppression of methane formation during Fisher-Tropsch synthesis using manganese- cobalt oxide supported on H-5A zeolite as a catalyst, *Journal of Natural Gas Chemistry*, 18, 187-190.
- [10] **Steynberg, A. P., Dry, M. E., Davis, B. H., & Breman, B. B.** (2004). Fischer-tropsch reactors. In *Studies in Surface Science and Catalysis, Elsevier*, 152, 64-195.
- [11] **Espinoza, R.L., Steynberg, A.P., Jager, B., & Vosloo, A.C.**, (1999). Low temperature Fischer–Tropsch synthesis from a Sasol perspective, *Applied Catalysis A: General* 186 13-26.
- [12] **Todić, B., Ordonsky, V. V., Nikačević, N. M., Khodakov, A. Y., & Bukur, D. B.** (2015). Opportunities for intensification of Fischer–Tropsch synthesis through reduced formation of methane over cobalt catalysts in microreactors. *Catalysis Science & Technology*, 5(3), 1400-1411.

- [13] Gladden, L. F., Lim, M. H. M., Mantle, M. D., Sederman, A. J., & Stitt, E. H. (2003). MRI visualisation of two-phase flow in structured supports and trickle-bed reactors. *Catalysis Today*, 79, 203-210.
- [14] Kulkarni, R., Natividad, R., Wood, J., Stitt, E. H., & Winterbottom, J. M. (2005). A comparative study of residence time distribution and selectivity in a monolith CDC reactor and a trickle bed reactor. *Catalysis Today*, 105(3-4), 455-463.
- [15] Mantle, M. D., Sederman, A. J., Gladden, L. F., Raymahasay, S., Winterbottom, J. M., & Stitt, E. H. (2002). Dynamic MRI visualization of two-phase flow in a ceramic monolith. *AIChE journal*, 48(4), 909-912.
- [16] Klemm, E., Doering, H., Geisselmann, A., & Schirmer, S. (2007). Microstructured reactors in heterogenous catalysis. *Chemical Engineering & Technology: Industrial Chemistry-Plant Equipment-Process Engineering-Biotechnology*, 30(12), 1615-1621.
- [17] Tonkovich, A. L., Jarosch, K., Fitzgerald, S., Yang, B., Kilanowski, D., McDaniel, J., & Dritz, T. (2011). Microchannel Gas-to-Liquids for Monetizing Associated and Stranded Gas Reserves. *Velocys, Inc., 7950 Corporate Blvd., Plain City, Ohio 43064, USA, Oxford Catalyst Group*.
- [18] Almeida, L. C., Echave, F. J., Sanz, O., Centeno, M. A., Arzamendi, G., Gandia, L. M., ... & Montes, M. (2011). Fischer–Tropsch synthesis in microchannels. *Chemical Engineering Journal*, 167(2-3), 536-544.
- [19] Guettel, R., & Turek, T. (2009). Comparison of different reactor types for low temperature Fischer–Tropsch synthesis: a simulation study. *Chemical Engineering Science*, 64(5), 955-964.
- [20] Almeida, L. C., Sanz, O., Merino, D., Arzamendi, G., Gandía, L. M., & Montes, M. (2013). Kinetic analysis and microstructured reactors modeling for the Fischer–Tropsch synthesis over a Co–Re/Al₂O₃ catalyst. *Catalysis today*, 215, 103-111.
- [21] Knochen, J., Güttel, R., Knobloch, C., & Turek, T. (2010). Fischer–Tropsch synthesis in milli-structured fixed-bed reactors: Experimental study and scale-up considerations. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 49(9), 958-964.
- [22] Chambrey, S., Fongarland, P., Karaca, H., Piché, S., Griboval-Constant, A., Schweich, D., & Khodakov, A. Y. (2011). Fischer–Tropsch synthesis in milli-fixed bed reactor: Comparison with centimetric fixed bed and slurry stirred tank reactors. *Catalysis today*, 171(1), 201-206.
- [23] Wörner, M. (2003). *A compact introduction to the numerical modeling of multiphase flows*. Forschungszentrum Karlsruhe.
- [24] Bell, K. J. (1984). Two-phase flow in heat exchangers. *Two-Phase Flow and Heat Transfer Eds. by Chen XJ, Veziroğlu TN*, 341-361.
- [25] Ding, Y., (1993) . Experimental investigation of two phase flow phenomena in horizontal convective in tube boiling system. Ph.D. Thesis, University of Miami, Florida,USA, p 21-65.

- [26] **Hewitt, G.F., Kawaji, M.** (1999). Fluid mechanic aspects of two-phase flow. In *Handbook of Phase Change: Boiling and Condensation*. Ed. by Kandlikar SG, Shoji M, Dhir VK. Taylor&Francis, 205-259.
- [27] **Widmann, F.**, (1993). Experimental investigation of two-phase flow instabilities in a horizontal convective in-tube boiling system. Ms. thesis. University of Miami, Coral Gables, Florida.
- [28] **Shao, N., Gavriilidis, A., & Angeli, P.** (2010). Mass transfer during Taylor flow in microchannels with and without chemical reaction. *Chemical Engineering Journal*, 160(3), 873-881.
- [29] **Angeli, P., & Gavriilidis, A.** (2008). Hydrodynamics of Taylor flow in small channels: a review. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part C: Journal of Mechanical Engineering Science*, 222(5), 737-751.
- [30] **Kreutzer, M. T.**, 2003, Hydrodynamics of Taylor flow in capillaries and monolith reactors, Ph.D. Thesis, Technical University of Delft.
- [31] **Irandoost, S., & Andersson, B.** (1988, January). Mass transfer and liquid-phase reactions in a segmented two-phase flow monolithic catalyst reactor. In *Tenth International Symposium on Chemical Reaction Engineering* (pp. 1983-1988). Pergamon.
- [32] **Bercić, G., & Pintar, A.** (1997). The role of gas bubbles and liquid slug lengths on mass transport in the Taylor flow through capillaries. *Chemical Engineering Science*, 52(21-22), 3709-3719.
- [33] **Fairbrother, F., & Stubbs, A. E.** (1935). 119. Studies in electro-endosmosis. Part VI. The “bubble-tube” method of measurement. *Journal of the Chemical Society (Resumed)*, 527-529.
- [34] **Salman, W., Gavriilidis, A., & Angeli, P.** (2004). A model for predicting axial mixing during gas-liquid Taylor flow in microchannels at low Bodenstein numbers. *Chemical Engineering Journal*, 101(1-3), 391-396.
- [35] **Taha, T., & Cui, Z. F.** (2004). Hydrodynamics of slug flow inside capillaries. *Chemical Engineering Science*, 59(6), 1181-1190.
- [36] **Taylor, G. I.** (1961). Deposition of a viscous fluid on the wall of a tube. *J. FluidMech.*, 10, 161-165.
- [37] **Chen, J. D.** (1986). Measuring the film thickness surrounding a bubble inside a capillary. *J. Colloid Interf. Sci.*, 109(7), 341-349.
- [38] **Marchessault, R. N. and Mason, S. G.** (1960). Flow of entrapped bubbles inside a capillary. *Ind. Eng. Chem.*, 52(1), 79-84.
- [39] **Irandoost, S. and Andersson, B.** (1989). Liquid film in Taylor flow through a capillary. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 28, 1684-1688.
- [40] **Aussillous, P., & Quéré, D.** (2000). Quick deposition of a fluid on the wall of a tube. *Physics of fluids*, 12(10), 2367-2371.

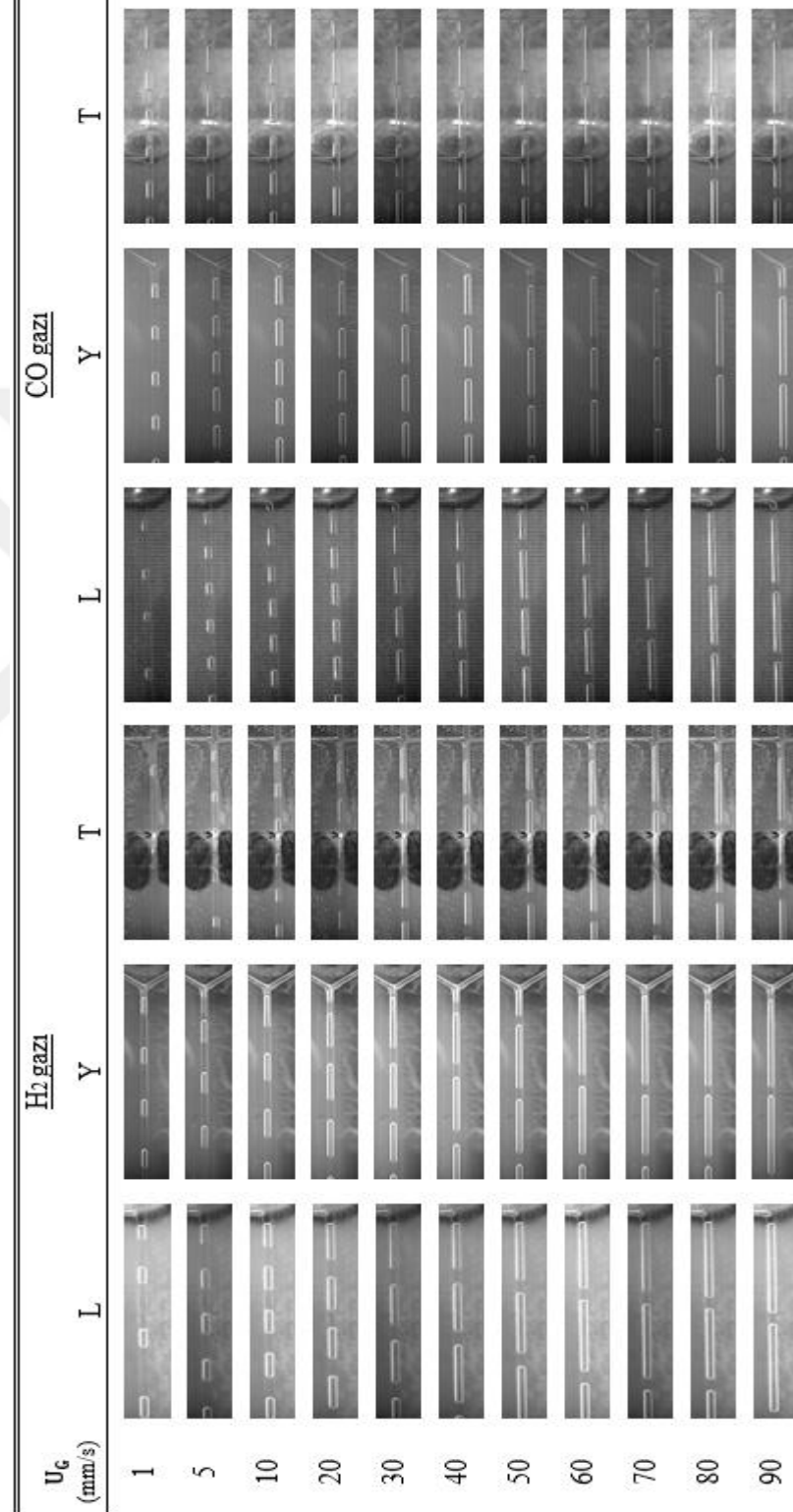
- [41] **Bretherton, F. P.** (1961). The motion of long bubbles in tubes. *J. FluidMech.*, 10, 166–188.
- [42] **Kreutzer, M. T., Kapteijn, F., Moulijn, J. A., & Heiszwolf, J. J.** (2005). Multiphase monolith reactors: chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels. *Chemical Engineering Science*, 60(22), 5895-5916.
- [43] **De Ryck, A.** (2002). The effect of weak inertia on the emptying of a tube. *Physics of Fluids*, 14(7), 2102-2108.
- [44] **Haase, S., Murzin, D. Y., & Salmi, T.** (2016). Review on hydrodynamics and mass transfer in minichannel wall reactors with gas–liquid Taylor flow. *Chemical Engineering Research and Design*, 113, 304-329.
- [45] **Kolb, W. B. and Cerro, R. L.** (1991). Coating the inside of a capillary of square cross section. *Chem. Eng. Sci.*, 46(9), 2181–2195.
- [46] **Kolb, W. B. and Cerro, R. L.** (1993). Film flow in the space between a circular bubble and a square tube. *J. Colloid Interf. Sci.*, 159, 302–311.
- [47] **Kolb, W. B. and Cerro, R. L.** (1993). The motion of long bubbles in tubes of square cross section. *Phys. Fluids*, 5(7), 1549–1557.
- [48] **Thulasidas, T. C., Abraham, M. A., and Cerro, R. L.** (1995). Bubble train flow in capillaries of circular and square cross section. *Chem. Eng. Sci.*, 50(7), 183–199.
- [49] **Liu, H., Vandu, C. O., & Krishna, R.** (2005). Hydrodynamics of Taylor flow in vertical capillaries: flow regimes, bubble rise velocity, liquid slug length, and pressure drop. *Industrial & engineering chemistry research*, 44(14), 4884-4897.
- [50] **Tsoligkas, A. N., Simmons, M. J. H., & Wood, J.** (2007). Influence of orientation upon the hydrodynamics of gas–liquid flow for square channels in monolith supports. *Chemical engineering science*, 62(16), 4365-4378.
- [51] **Thulasidas, T. C., Abraham, M. A., & Cerro, R. L.** (1997). Flow patterns in liquid slugs during bubble-train flow inside capillaries. *Chemical Engineering Science*, 52(17), 2947-2962.
- [52] **Kreutzer, M. T., van der Eijnden, M. G., Kapteijn, F., Moulijn, J. A., & Heiszwolf, J. J.** (2005). The pressure drop experiment to determine slug lengths in multiphase monoliths. *Catalysis Today*, 105(3-4), 667-672.
- [53] **Abiev, R. S.** (2010). Method for calculating the void fraction and relative length of bubbles under slug flow conditions in capillaries. *Theoretical Foundations of Chemical Engineering*, 44(1), 86-101.
- [54] **Keskin, Ö., Wörner, M., Soyhan, H. S., Bauer, T., Deutschmann, O., & Lange, R.** (2010). Viscous co-current downward Taylor flow in a square mini-channel. *AIChE journal*, 56(7), 1693-1702.
- [55] **Haase, S., & Bauer, T.** (2011). New method for simultaneous measurement of hydrodynamics and reaction rates in a mini-channel with Taylor flow. *Chemical engineering journal*, 176, 65-74.

- [56] Sobieszuk, P., Aubin, J., & Pohorecki, R. (2012). Hydrodynamics and mass transfer in gas-liquid flows in microreactors. *Chemical Engineering & Technology*, 35(8), 1346-1358.
- [57] Cybulski, A., Moulijn, J.A., (2006). Structured Catalysts and Reactors, 2nd ed. Taylor & Francis, Boca Raton.
- [58] Hessel, V., Angeli, P., Gavriilidis, A., & Löwe, H. (2005). Gas-liquid and gas-liquid-solid microstructured reactors: contacting principles and applications. *Industrial & engineering chemistry research*, 44(25), 9750-9769.
- [59] Laborie, S., Cabassud, C., Durand-Bourlier, L., & Laine, J. M. (1999). Characterisation of gas-liquid two-phase flow inside capillaries. *Chemical Engineering Science*, 54(23), 5723-5735.
- [60] Shao, N., Salman, W., Gavriilidis, A., & Angeli, P. (2008). CFD simulations of the effect of inlet conditions on Taylor flow formation. *International journal of heat and fluid flow*, 29(6), 1603-1611.
- [61] Qian, D., & Lawal, A. (2006). Numerical study on gas and liquid slugs for Taylor flow in a T-junction microchannel. *Chemical Engineering Science*, 61(23), 7609-7625.
- [62] Xiong, R.Q., Bai, M., Chung, J.N., (2007). Formation of bubbles in a simple co-flowing micro-channel. *J. Micromech. Microeng.* 17(May (5)), 1002-1011.
- [63] Salman, W., Gavriilidis, A., & Angeli, P. (2006). On the formation of Taylor bubbles in small tubes. *Chemical Engineering Science*, 61(20), 6653-6666.
- [64] Akbar, M. K., & Ghiaasiaan, S. M. (2006). Simulation of Taylor flow in capillaries based on the volume-of-fluid technique. *Industrial & engineering chemistry research*, 45(15), 5396-5403.
- [65] Sobieszuk, P., Cygański, P., & Pohorecki, R. (2010). Bubble lengths in the gas-liquid Taylor flow in microchannels. *Chemical engineering research and design*, 88(3), 263-269.
- [66] Pohorecki, R., & Kula, K. (2008). A simple mechanism of bubble and slug formation in Taylor flow in microchannels, *Chemical engineering research and design*, 86(9), 997-1001.

EKLER

EK A: Kabarcık ve slugların farklı hızlardaki görüntüleri

Çizelge A.1: $U_L=20$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri



Çizelge A.2: $U_L = 30$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri

U_G (mm/s)	H_2 gazı				CO gazı			
	L	Y	T	L	Y	T	L	Y
1								
5								
10								
20								
30								
40								
50								
60								
70								
80								
90								

Çizelge A.3: $U_L = 40$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri

U_G (mm/s)	H_2 gazı				CO gazı				
	L	Y	T	L	Y	T	L	Y	T
1									
5									
10									
20									
30									
40									
50									
60									
70									
80									
90									

Çizelge A.4: $U_L = 50$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri

U_c (mm/s)	H_2 gazı				CO gazı			
	L	Y	T	L	Y	T	L	Y
1								
5								
10								
20								
30								
40								
50								
60								
70								
80								
90								

Çizelge A.5: $U_L = 60$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri

U_c (mm/s)	H_2 gazı				CO gazı			
	L	Y	T	T görüntülenemedi	L	Y	T	T
1								
5								
10								
20								
30								
40								
50								
60								
70								
80								
90								

Çizelge A.6: $U_L = 70$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri

U_c (mm/s)	H_2 gazı				CO gazı			
	L	Y	T	L	Y	L	Y	T
1								
5								
10								
20								
30								
40								
50								
60								
70								
80								
90								

Çizelge A.7: $U_L = 80$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri

U_G (mm/s)	H_2 gazı				CO gazı			
	L	Y	T	L	Y	L	T	
1								
5								
10								
20								
30								
40								
50								
60								
70								
80								
90								

























































































Çizelge A.8: $U_L = 90$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri

U_G (mm/s)	H_2 gazı				CO gazı			
	L	Y	T	T	L	Y	Y	T
1								
5								
10								
20								
30								
40								
50								
60								
70								
80								
90								

Çizelge A.9: $U_L=100$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri

U_c (mm/s)	H_2 gazı				CO gazı			
	L	Y	T	L	Y	L	Y	T
1								
5								
10								
20								
30								
40								
50								
60								
70								
80								
90								

Çizelge A.10: $U_L = 200$ mm/s 'de reaktörlerde gaz geçişleri

U_c (mm/s)	H_2 gazı				CO gazı			
	L	Y	T	L	Y	L	Y	T
1								
5								
10								
20								
30								
40								
50								
60								
70								
80								
90								

EK B: Literatür Modelleri ile Deneysel Sonuçların Karşılaştırılması

Çizelge B.1: L tipi reaktörde literatürdeki modellerin deneysel verilerle karşılaştırılması

Model Adı	H ₂ Gazı	R ²	CO Gazı	R ²
Laborie: L _B modeli	$L_B / d_h = 1,4231 \frac{Eo^{1,9179}}{Re_V^{0,1255}}$	0,1133	$L_B / d_h = 1,0404 \frac{Eo^{1,6827}}{Re_V^{0,0464}}$	0,0490
Laborie: L _S modeli	$L_S / d_h = 13,65 \left(\frac{1}{Re'_G Eo} \right)^{-0,3963}$	0,8405	$L_S / d_h = 18,2189 \left(\frac{1}{Re'_G Eo} \right)^{-0,5090}$	0,9479
Kreutzer modeli	$L_S = \frac{\beta_L}{0,0448 - 0,7557 \beta_L^2 \ln(\beta_L)} d_h$	0,9087	$L_S = \frac{\beta_L}{0,0263 - 0,8949 \beta_L^2 \ln(\beta_L)} d_h$	0,9812
Liu modeli	$L_S = \left(\frac{U_{TP}}{10,1701 Re_G^{0,3622} Re_L^{0,4590}} \right)^2$	0,8545	$L_S = \left(\frac{U_{TP}}{2,1472 Re_L^{0,4002} Re_L^{0,6254}} \right)^2$	0,9459
Qian and Lawal L _B modeli	$L_B / d_h = 1,984 \varepsilon_G^{0,1702} (1 - \varepsilon_G)^{-1,0218} Re^{-0,110} Ca^{-0,1708}$	0,9846	$L_B / d_h = 1,684 \varepsilon_G^{0,1207} (1 - \varepsilon_G)^{-1,1732} Re^{-0,1253} Ca^{-0,1788}$	0,9946
Qian and Lawal L _S modeli	$L_S / d_h = 1,537 \varepsilon_G^{-0,4236} (1 - \varepsilon_G)^{0,5337} Re^{0,1138} Ca^{-0,0223}$	0,9203	$L_S / d_h = 1,271 \varepsilon_G^{-0,5342} (1 - \varepsilon_G)^{0,3486} Re^{-0,0094} Ca^{-0,1194}$	0,9823
Shao: L _B modeli	$L_B = (1 + 4,1316 \frac{U_G}{U_L}) d_h$	0,9680	$L_B = (1 + 4,1612 \frac{U_G}{U_L}) d_h$	0,9626
Shao: L _S modeli	$L_S = (1 + 1,1693 \frac{U_G}{U_L}) d_h \frac{(1 - \varepsilon_G)}{\varepsilon_G}$	0,9355	$L_S = (1 + 1,2860 \frac{U_G}{U_L}) d_h \frac{(1 - \varepsilon_G)}{\varepsilon_G}$	0,9539

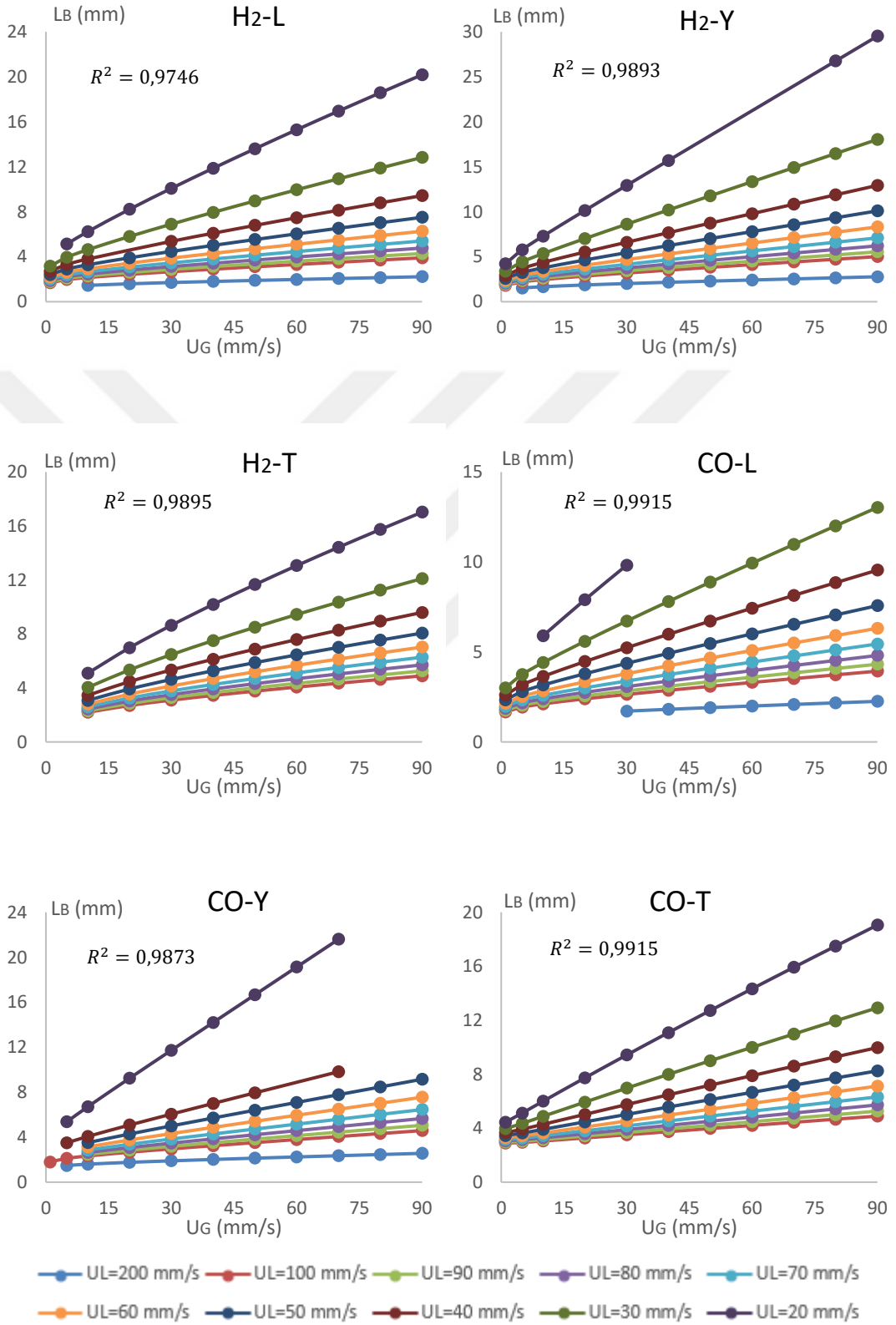
Model Adı	H ₂ Gazı	R ²	CO Gazı	R ²
Laborie: L _B modeli	$L_B/d_h = 1,2992 \frac{Eo^{1,8638}}{Re_V^{0,0620}}$	0,0513	$L_B/d_h = 2,3265 \frac{Eo^{2,6144}}{Re_V^{0,3549}}$	0,3126
Laborie: L _S modeli	$L_S/d_h = 11,0423 \left(\frac{1}{Re'_G Eo} \right)^{-0,3807}$	0,9347	$L_S/d_h = 8,5083 \left(\frac{1}{Re'_G Eo} \right)^{-0,3045}$	0,6928
Kreutzer modeli	$L_S = \frac{\beta_L}{0,0585 - 0,8443 \beta_L^2 \ln(\beta_L)} d_h$	0,9600	$L_S = \frac{\beta_L}{0,1005 - 0,5736 \beta_L^2 \ln(\beta_L)} d_h$	0,7715
Liu modeli	$L_S = \left(\frac{U_{TP}}{5,5621 Re_G^{0,3628} Re_L^{0,6078}} \right)^2$	0,8481	$L_S = \left(\frac{U_{TP}}{3,7175 Re_L^{0,2906} Re_L^{0,5627}} \right)^2$	0,4452
Qian and Lawal L _B modeli	$L_B/d_h = \frac{1}{1,975 \varepsilon_G^{0,1309} (1-\varepsilon_G)^{-1,2769} Re^{-0,1344} Ca^{-0,1927}}$	0,9905	$L_B/d_h = \frac{1}{1,865 \varepsilon_G^{0,1082} (1-\varepsilon_G)^{-1,1968} Re^{-0,1405} Ca^{-0,1814}}$	0,9889
Qian and Lawal L _S modeli	$L_S/d_h = \frac{1}{1,054 \varepsilon_G^{-0,2760} (1-\varepsilon_G)^{0,7122} Re^{0,019} Ca^{-0,1869}}$	0,9284	$L_S/d_h = \frac{1}{1,284 \varepsilon_G^{-0,1197} (1-\varepsilon_G)^{1,1594} Re^{-0,0017} Ca^{-0,2274}}$	0,8553
Shao: L _B modeli	$L_B = (1 + 5,8067 \frac{U_G}{U_L}) d_h$	0,9701	$L_B = (1 + 4,6359 \frac{U_G}{U_L}) d_h$	0,9642
Shao: L _S modeli	$L_S = (1 + 0,4407 \frac{U_G}{U_L}) d_h \frac{(1-\varepsilon_G)}{\varepsilon_G}$	0,9039	$L_S = (1 + 0,4525 \frac{U_G}{U_L}) d_h \frac{(1-\varepsilon_G)}{\varepsilon_G}$	0,8271

Çizelge B.2: Y tipi reaktörde literatürdeki modellerin deneysel verilerle karşılaştırılması

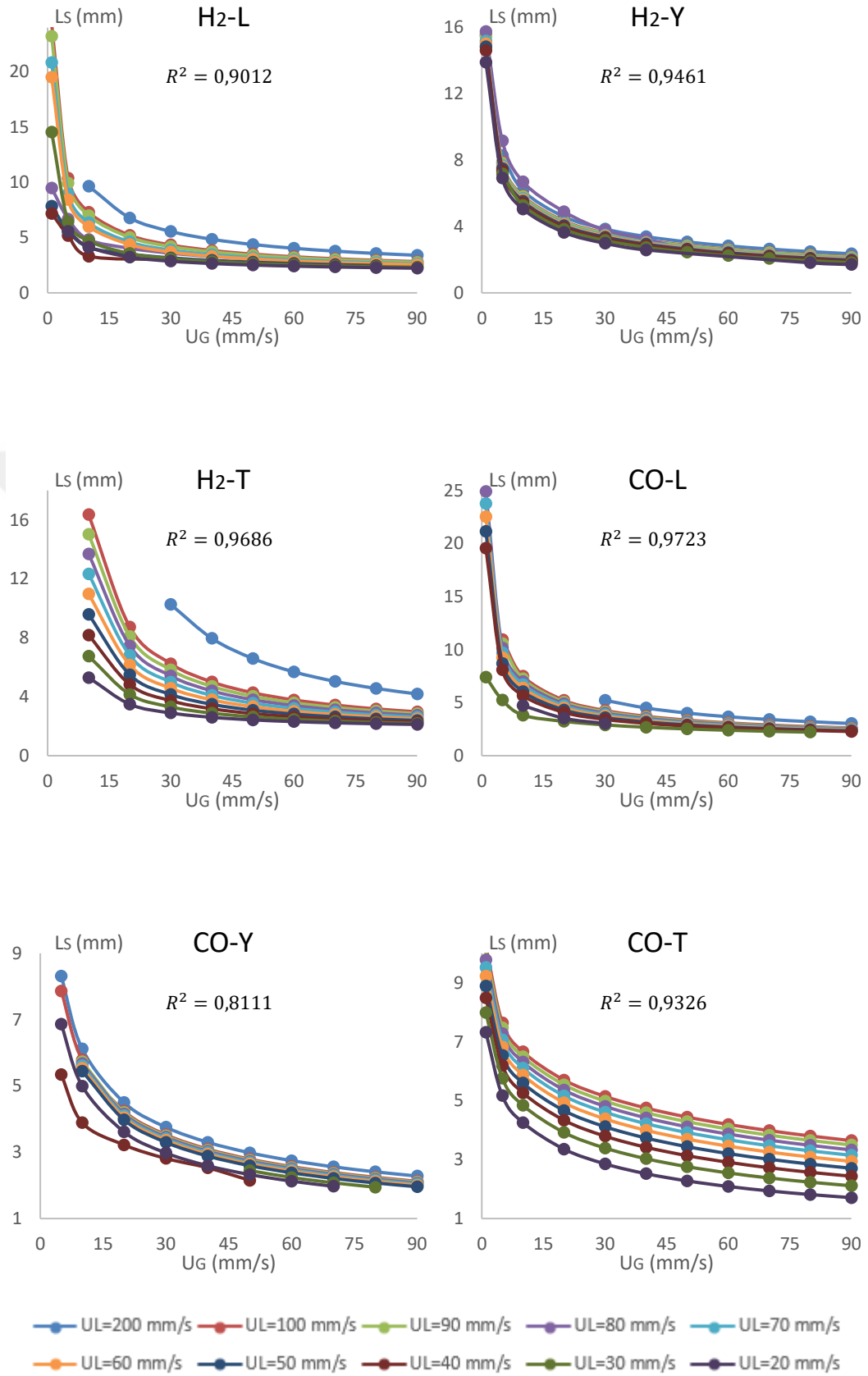
Model Adı	H ₂ Gazı	R ²	CO Gazı	R ²
Laborie: L _B modeli	$L_B/d_h = 1,3778 \frac{Eo^{1,8587}}{Re_V^{0,0880}}$	0,0842	$L_B/d_h = 1,3976 Re_V^{0,0121} Eo^{1,4723}$	0,0119
Laborie: L _S modeli	$L_S/d_h = 0,2376 \left(\frac{1}{Re_G Eo} \right)^{-0,4282}$	0,6907	$L_S/d_h = 6,9006 \left(\frac{1}{Re_G Eo} \right)^{-0,1874}$	0,7724
Kreutzer modeli	$L_S = \frac{\beta_L}{-0,0003 - 0,7429 \beta_L^2 \ln(\beta_L)} d_h$	0,9270	$L_S = \frac{\beta_L}{0,1280 - 0,1711 \beta_L^2 \ln(\beta_L)} d_h$	0,9200
Liu modeli	$L_S = \left(\frac{U_{TP}}{10,488 Re_G^{0,6266} Re_L^{0,4860}} \right)^2$	0,9221	$L_S = \left(\frac{U_{TP}}{7,0263 Re_L^{0,264} Re_L^{0,4099}} \right)^2$	0,5850
Qian and Lawal L _B modeli	$L_B/d_h = \frac{1,996 \varepsilon_G^{0,2118} (1-\varepsilon_G)^{-0,9532} Re^{-0,0102} Ca^{-0,1019}}{1,996 \varepsilon_G^{0,2118} (1-\varepsilon_G)^{-0,9532} Re^{-0,0102} Ca^{-0,1019}}$	0,9906	$L_B/d_h = \frac{1,872 \varepsilon_G^{0,0257} (1-\varepsilon_G)^{-1,0202} Re^{-0,0736} Ca^{-0,1573}}{1,872 \varepsilon_G^{0,0257} (1-\varepsilon_G)^{-1,0202} Re^{-0,0736} Ca^{-0,1573}}$	0,9914
Qian and Lawal L _S modeli	$L_S/d_h = \frac{1,214 \varepsilon_G^{-0,9046} (1-\varepsilon_G)^{0,1864} Re^{-0,0714} Ca^{-0,1329}}{1,214 \varepsilon_G^{-0,9046} (1-\varepsilon_G)^{0,1864} Re^{-0,0714} Ca^{-0,1329}}$	0,9432	$L_S/d_h = \frac{2,0012 \varepsilon_G^{-0,1351} (1-\varepsilon_G)^{0,658} Re^{0,1641} Ca^{-0,0068}}{2,0012 \varepsilon_G^{-0,1351} (1-\varepsilon_G)^{0,658} Re^{0,1641} Ca^{-0,0068}}$	0,9444
Shao: L _B modeli	$L_B = (1 + 4,1366 \frac{U_G}{U_L}) d_h$	0,9866	$L_B = (1 + 4,6846 \frac{U_G}{U_L}) d_h$	0,9742
Shao: L _S modeli	$L_S = (1 + 2,9692 \frac{U_G}{U_L}) d_h \frac{(1-\varepsilon_G)}{\varepsilon_G}$	0,9305	$L_S = (1 + 1,0709 \frac{U_G}{U_L}) d_h \frac{(1-\varepsilon_G)}{\varepsilon_G}$	0,8923

Çizelge B.3: T tipi reaktörde literatürdeki modellerin deneysel verilerle karşılaştırılması

EK C: Yeni Modele Göre Hız - Uzunluk Grafikleri



Şekil C.1 : Yeni modele göre hesaplanan L_B değerlerinin uygunluğu



Şekil C.2 : Yeni modele göre hesaplanan L_s değerlerinin uygunluğu

ÖZGEÇMİŞ



Ad-Soyad : Selay Uzunlar
Doğum Tarihi ve Yeri : 20.12.1991 Osmangazi/Bursa
E-posta : selay.senguler@gmail.com

ÖĞRENİM DURUMU:

- **Lisans** : 2014, İstanbul Üniversitesi, Müh. Fak., Kimya Mühendisliği
- **Yüksek Lisans** : 2019, Bursa Teknik Üniversitesi, Kimya Mühendisliği ABD

MESLEKİ DENEYİM VE ÖDÜLLER:

- 04/2016 – 12/2016, Sözal Kimya Sanayi Pazarlama LTD.ŞTİ. -Kalite Kontrol Sorumlusu