

جداسازی فازهای آبی و آلی به کمک فناوری میکروسیالی

علی پوراصغر محمدی، علی اصغر محمدی*، داریوش باستانی

دانشکده مهندسی شیمی و نفت، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران

مشخصات مقاله

تاریخچه مقاله:

دریافت: ۲۷ فروردین ۱۳۹۷

دریافت پس از اصلاح: ۱۳ شهریور ۱۳۹۷

پذیرش نهایی: ۲۹ مهر ۱۳۹۷

کلمات کلیدی:

جداسازی

میکروسیالی

موئین

چکیده

در این پژوهش جداسازی آب و هگزان در تراشه‌های میکروسیالی دوبعدی شیشه‌ای، که به روش حکاکی لیزر و اتصالی حرارتی ساخته شدند، مورد بررسی آزمایشگاهی قرار گرفت. تراشه‌های میکروسیالی شامل یک کانال اصلی و کانال‌های موئین جانبی بوده که می‌بایستی آب از کانال‌های موئین و هگزان از کانال اصلی از تراشه خارج می‌گردید. نتایج نشان داد که با کاهش عرض و افزایش تعداد کانال‌های موئین، و افزایش دبی آب، میزان جداسازی افزایش و با افزایش دبی هگزان و افزایش طول کانال‌های موئین، میزان جداسازی کاهش یافت. همچنین، برای افزایش دبی عملیاتی، تراشه‌های میکروسیالی سه‌بعدی، که شامل چهار میکروجداساز موئین موازی بودند، ساخت شد. با افزایش تعداد کانال‌های موئین از ۲۵ به ۳۵، میزان جداسازی افزایش قابل توجهی یافت ولی با افزایش تعداد به ۴۰ تغییر قابل توجهی در میزان جداسازی مشاهده نشد. با تراشه‌های سه‌بعدی، بازده جداسازی ۶۰ درصدی در دبی ۱.۵ میلی‌لیتر بر دقیقه حاصل گردید که برای افزایش میزان جداسازی یک راهکار کاهش عرض کانال‌های موئین می‌باشد.

حقوق ناشر محفوظ است.

* عهده دار مکاتبات:

amohammadi@sharif.edu

۱- مقدمه

میکروسیالی علم و فناوری مطالعه رفتار سیالات، کنترل آن‌ها و طراحی دستگاه‌هایی با چنین وظایفی در میکروکانال‌ها با ابعاد ده‌ها تا صدها میکرومتر، می‌باشد [۱]. از مزایای ذاتی عملیات در مقیاس میکرو می‌توان به نسبت بالای سطح به حجم، مقدار کم نمونه مورد استفاده و اتلاف کم محصول، عملکرد بالای سیستم و انجام چندین مرحله عملیاتی در یک قطعه فشرده‌شده برای تولید، جداسازی و آنالیز نام برد [۲، ۳]. یکی از کاربردهای گسترده میکروسیالی، سنتز مواد شیمیایی به کمک میکروراکتورها می‌باشد. در بسیاری از سنتزهای شیمیایی انجام‌شده با میکروراکتورها، فرآورده‌های واکنش ناخالص بوده و نیازمند خالص‌سازی می‌باشد. برای این منظور عملیات‌های مختلف جداسازی و خالص‌سازی می‌تواند مورد استفاده قرار گیرد. یکی از این عملیات‌ها استخراج می‌باشد.

استخراج یکی از مهم‌ترین روش‌های جداسازی در صنایع شیمیایی است که به دلیل تفاوت در حلالیت بین فازهای غیرقابل اختلاط به‌منظور جداسازی، تغلیظ و خالص‌سازی به‌کاربرده می‌شود. تاریخچه استخراج به آزمایش‌های بوجلز^۱ بر روی توزیع اجزا بین فازهای آبی و آلی برمی‌گردد [۴]. با رشد روزافزون این عملیات، امروزه از آن برای تولید فلزات، بازیافت فاضلاب، خالص‌سازی و تغلیظ اجزای مهم بیولوژیکی مانند DNA استفاده می‌شود [۵-۸].

عملیات استخراج در آزمایشگاه با ظروف شیشه‌ای استاندارد مثل بالن حجمی، قیف جداسازی، بشر و همزن انجام می‌شود. همچنین در صنایع شیمیایی از مخلوط‌کننده-ته‌نشین‌کننده و تماس دهنده سانتریفیوژی استفاده می‌شود. ولی این‌گونه از تجهیزات مستلزم استفاده از مقادیر زیاد حلال، زمان تعادل طولانی و عملیات تحت رژیم ناشناخته‌ای می‌باشند. به‌منظور کاهش این مشکلات پژوهش‌هایی برای استفاده از حجم کم فاز آلی، کاهش اتلاف مواد شیمیایی، افزایش راندمان و کنترل هیدرودینامیک سیالات انجام‌شد که منجر به گسترش میکرواستخراج گردیده است.

در عملیات میکرواستخراج مقادیر بسیار کم حلال برای استخراج و غنی‌سازی نمونه مایع، گاز یا جامد استفاده می‌شود. واژه استخراج در میکروسیالی برای اولین بار توسط

برودی و یاگر^۲ در بررسی نفوذ یک مولکول فلئورسنت از یک جریان آبی به جریان آبی دیگر در یک میکروکانال مورد استفاده قرار گرفت [۹]. بررسی‌های اولیه روی انتقال مولکولی بین دو فاز غیرقابل اختلاط توسط ساتو^۳ انجام شد [۱۰]. بعدازآن کیتاموری^۴ و همکاران به‌طور گسترده از میکروسیالی در زمینه استخراج استفاده کردند [۱۱].

با توجه به مزایای ذاتی عملیات در مقیاس میکرو، قابل‌درک بودن دینامیک واکنش‌ها در میکروسیالی و همچنین توانایی ایجاد هر هندسه دلخواه از تراشه‌های میکروسیالی، می‌توان از میکرواستخراج به‌عنوان ابزاری قدرتمند بهره برد. به‌هرحال یکی از مسائل اساسی در استفاده از میکرواستخراج، جداسازی فازهای در تماس بعد از انجام انتقال جرم بین فاز می‌باشد. با توجه به این‌که تماس دو فاز و همچنین جداسازی دو فاز به‌شدت به الگوی جریان بستگی دارد، در ادامه جداسازی‌های فازی صورت گرفته برای جریان‌های موازی^۵ و سگمنت^۶ مورد بررسی قرار می‌گیرند.

در جریان موازی، با توجه به اینکه هر دو فاز کنار یکدیگر جریان دارند، می‌توان به‌وسیله یک خروجی Y شکل در انتهای میکروکانال دو فاز را از همدیگر جدا کرد [۱۲-۱۵] و بازده جداسازی فازی را می‌توان با آب‌دوست و آب‌گریز کردن هر کدام از شاخه‌های خروجی Y شکل افزایش داد [۱۶]. در جریان سگمنت، دو فاز مایع به بخش‌های متناوب تقسیم می‌گردد. فاز ترکنده به شکل یک فیلم نازک در اطراف فاز غیرترکنده به‌صورت اسلاگ^۷ درمی‌آید، در نتیجه باعث افزایش سطح تماس می‌شود [۱۷]. تنش برشی بین اسلاگ و فاز پیوسته و یا دیواره کانال منجر به چرخش داخلی در هر دو فاز می‌شود. در مقایسه با جداسازی در جریان موازی، جداسازی در جریان سگمنت چالش‌برانگیزتر می‌باشد. نیروهای سطحی در این مقیاس غالب می‌باشد و بسیاری از پژوهشگران از این نیرو برای جداسازی فازها استفاده کرده‌اند [۱۷، ۱۸].

برای مثال، کاشید و همکاران^۸ دستگاهی به‌عنوان مخلوط‌کننده-ته‌نشین‌کننده میکروسیالی ارائه دادند [۱۷] که شامل کانال تفلونی Y شکل برای مخلوط کردن، لوله PTFE، و یک

² Brody and Yager

³ Sato

⁴ Kitamori

⁵ Parallel

⁶ Segmented

⁷ Slug

⁸ Kashid

¹ Bucholz

۲- تئوری جداسازی فازی به روش موئینگی در سیستم‌های میکرو

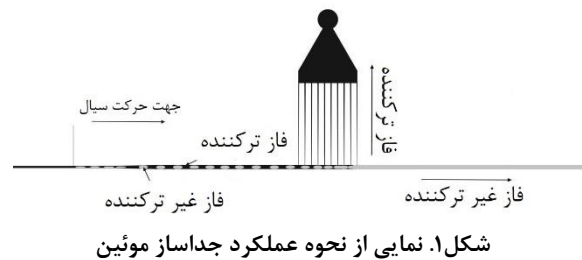
در سیستم‌هایی با ابعاد ماکرو، جداسازی فازی معمولاً بر اساس نیروی گرانش است. کاهش ابعاد کانال به محدوده میکرومتری بر نیروهای حاکم تأثیر می‌گذارد. نیروهای حجمی مانند گرانش در سیستم‌های میکرو نسبت به نیروهای سطحی قابل صرف‌نظر کردن می‌باشد. برای بیان بهتر این مسئله از عدد بی‌بعد بانده^{۱۲} که نشان دهنده نسبت نیروهای حجمی به نیروهای سطحی می‌باشد، استفاده می‌شود:

$$Bo = \frac{\Delta\rho g d_h^2}{\sigma} \quad (1)$$

که در آن $\Delta\rho$ اختلاف چگالی، g ثابت گرانش، d_h قطر هیدرولیکی و σ کشش بین سطحی می‌باشد. در سیستم‌های میکرو عدد بانده به مراتب کوچک‌تر از یک می‌باشد که این نشان‌دهنده غلبه نیروهای سطحی بر نیروهای حجمی می‌باشد. بنابراین برای جداسازی در سیستم‌های میکرو می‌بایست از نیروهای سطحی همچون نیروی موئینگی استفاده نمود.

برای استفاده از نیروهای موئینگی برای جداسازی، دو فاز جداشونده باید دارای ویژگی‌های سطحی متفاوتی نسبت به جنس میکروکانال باشند. در حالت ایده آل باید فقط یکی از فازها سطح کانال را تر کند. اگر میکروکانال ویژگی موردنظر را نداشته باشد، با استفاده از پوشش دهی می‌توان به زاویه تماس مناسب رسید. باین‌حال، این فرآیند ساخت پیچیده بوده و پوشش دهی در طولانی‌مدت پایدار نمی‌باشد. برای جداسازی مؤثر توسط جداساز موئین، که نمایی از آن در شکل ۱ نشان داده شده است، افت فشار در هر دو خروجی باید دو شرط را تأمین کند. شرط اول کوچک‌تر بودن افت فشار هیدرودینامیکی در کانال‌های موئین، Δp_{sep} از افت فشار هیدرودینامیکی در کانال اصلی، Δp_{mc} می‌باشد، به این معنی که مقاومت سیال^{۱۳} در کانال اصلی باید بیشتر باشد، به طوری که هر دو سیال تمایل داشته باشند به سمت کانال‌های موئین جریان یابند. برای تأمین این شرط، جداساز موئین معمولاً شامل تعدادی کانال موئین موازی می‌باشد که با توزیع جریان بین کانال‌های موئین موجب کاهش مقاومت

تقسیم‌کننده بود. جریان در طول لوله PTFE اسلاگ بوده و جداسازی با استفاده از خواص سطحی از طریق دو لوله موئین از جنس PTFE و استیل انجام شد. روشی دیگر برای جداسازی فازی بر اساس ترشوندگی استفاده از شکاف‌های موئین شکل می‌باشد که توسط کاگییر و همکاران^۹ مورد مطالعه قرار گرفت [۱۹]. گزینه دیگر برای جداسازی فازی استفاده از نیروی موئینگی است. این نوع از جداساز شامل یک کانال اصلی و تعدادی کانال موئین جانبی می‌باشد. نمایی از چنین جداسازی در شکل ۱ نشان داده شده است که یک فاز از طریق کانال‌های موئین و فاز دیگر از طریق کانال اصلی خارج می‌گردد. چنین جداسازی ابتدا توسط گونتر و همکاران^{۱۰} برای جداسازی جریان مایع گاز استفاده شد [۲۰]. همچنین، استفاده از نیروهای موئینگی برای جداسازی فازی توسط یینسن^{۱۱} و همکاران برای جداسازی جریان سگمنت گاز مایع و همچنین برای جداسازی دو فاز مایع مورد مطالعه قرار گرفت [۱۸، ۲۰].



در ادامه، با توجه به اینکه در این پژوهش جداسازی فازی به روش موئینگی مورد بررسی آزمایشگاهی قرار گرفته است، ابتدا (در بخش ۲) تئوری جداسازی فازی به روش موئینگی در سیستم‌های میکرو ارائه خواهد شد. سپس مواد و تجهیزات مورد استفاده، روش ساخت تراشه میکروسیالی، و همچنین روش انجام آزمایش‌های جداسازی فازی در بخش‌های ۳ و ۴ شرح داده می‌شود. در بخش ۵ نتایج آزمایش‌های جداسازی فازی ارائه و بحث خواهد شد و در انتها نتیجه‌گیری ارائه می‌گردد.

¹² Bond number

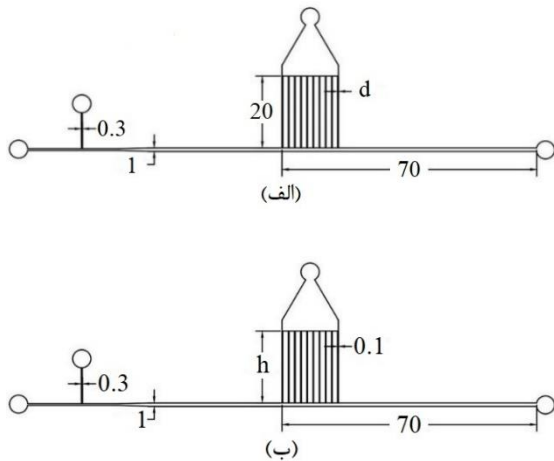
¹³ fluidic resistance

⁹Gaakeer

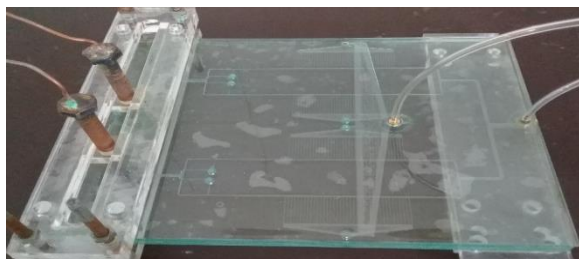
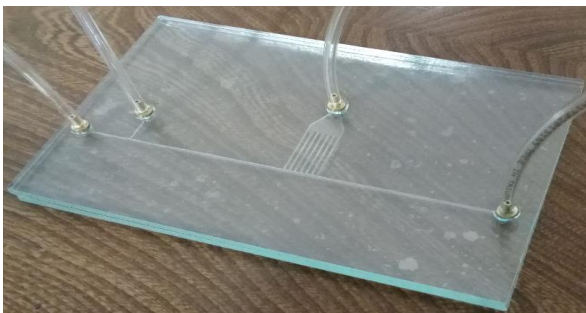
¹⁰Günther

¹¹Jensen

تراشه‌ای دوبعدی می‌باشد، در ابتدا طرح موردنظر، که در شکل ۲ نشان داده شده است، بر روی یک شیشه سودا-لایم به ضخامت ۴ میلی‌متر توسط لیزر کربن دی اکسید حکاکی گردید. پس از اتمام فرآیند حکاکی به‌منظور از بین بردن آلاینده‌های باقیمانده بر روی شیشه، قطعات شیشه به مدت ۲ ساعت در محلول پیرانه متشکل از سولفوریک اسید و هیدروژن پراکسید با نسبت حجمی ۱ به ۳ قرار گرفتند.



شکل ۲. (الف) طرح تراشه میکروسیالی نوع اول با طول کانال‌های موئین ۲۰ میلی‌متر و عرض کانال‌های موئین $d = 100, 200, 300$ و ۴۰۰ میکرومتر. (ب) طرح تراشه میکروسیالی نوع اول با عرض کانال‌های موئین ۱۰۰ میکرومتر و طول کانال‌های موئین $h = 10, 15$ و ۲۰ میلی‌متر. ابعاد به میلی‌متر می‌باشد.



شکل ۳. نمایی از تراشه‌های میکروسیالی نوع اول (ردیف بالا) و دوم (ردیف پایین).

سیال در قسمت کانال‌های موئین می‌شود. همچنین طراحی کانال‌های موئین به‌صورت مثلثی نیز موجب کاهش مقاومت سیال در قسمت موئین می‌باشد. راه حل دیگر استفاده از شیر تدریجی در قسمت خروجی کانال اصلی می‌باشد تا با تنظیم مقدار جریان خروجی از کانال اصلی شرط مورد نظر تامین شود:

$$\Delta p_{sep} < \Delta p_{mc} \quad (2)$$

شرط دوم جلوگیری از وارد شدن فاز غیرترکننده به کانال‌های موئین می‌باشد. اگر تفاوت بین افت فشار هیدرودینامیکی در هر دو خروجی کوچک‌تر از فشار موئینگی، p_c ، باشد، فاز غیرترکننده در داخل کانال اصلی باقی خواهد ماند:

$$\Delta p_{mc} - \Delta p_{sep} < p_c \quad (3)$$

هنگامی که هر دو معادله (۲) و (۳) تأمین شوند، جداسازی کامل فازی به‌صورت پیوسته در میکروجداساز حاصل می‌شود [۲۰].

بایستی توجه نمود که برای تعیین افت فشار هیدرودینامیکی از معادله هیگن-پویزله^{۱۴} و برای تعیین فشار موئینگی از معادله لاپلاس می‌توان استفاده کرد. در این راستا، فشار موئینگی، p_c ، در داخل یک لوله موئین با شعاع r را با معادله (۴) می‌توان محاسبه کرد:

$$p_c = \frac{2\sigma \cos\theta}{r} \quad (4)$$

که θ زاویه تماس می‌باشد. زاویه تماس، ترشوندگی سطح با سیال موردنظر را نشان می‌دهد. زاویه تماس بین 0° و 30° نشان‌دهنده ترشوندگی مناسب و فشار موئینگی مثبت می‌باشد. زاویه تماس بیش از 90° نشان‌دهنده سطح غیرترشونده و فشار موئینگی منفی می‌باشد. نظر به اینکه در این پژوهش میکروکانال‌های موئین سطح مقطع مستطیلی داشتند فشار موئینگی در داخل یک میکروکانال موئین با سطح مقطع مستطیلی را با معادله (۵) می‌توان محاسبه کرد:

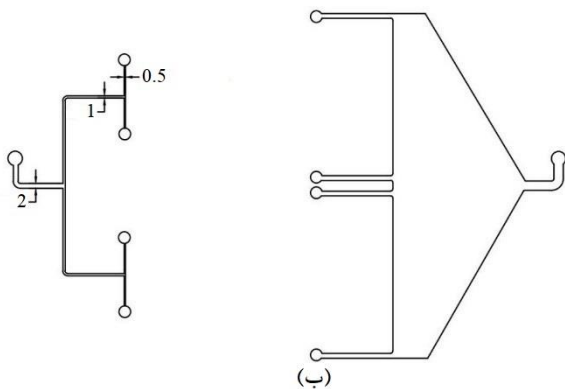
$$p_c = \frac{2\sigma \cos\theta}{hw/(h+w)} \quad (5)$$

که h و w ، به ترتیب، عمق و عرض کانال موئین می‌باشند.

۳- مواد و روش ساخت

برای انجام آزمایش‌های جداسازی فازی، دو نوع تراشه میکروسیالی، از جنس شیشه به روش حکاکی لیزر و اتصال حرارتی، ساخته شد. برای ساخت تراشه نوع اول، که به‌صورت

¹⁴Hagen-Poiseuille



شکل ۴. طرح تراشه میکروسیالی نوع دوم متشکل از چهار جداساز موازی؛ (الف) لایه زیرین و (ب) لایه بالایی. ابعاد به میلی‌متر می‌باشد.

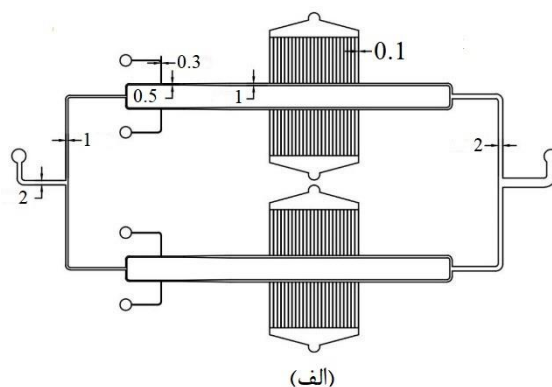
۴- نحوه انجام آزمایش

در این پژوهش با انجام آزمایش‌های جداسازی آب (فاز آبی) و هگزان (فاز آلی) در تراشه میکروسیالی نوع اول، (شکل ۲)، تأثیر عواملی همچون عرض، تعداد، و طول کانال‌های موئین بر میزان جداسازی دو فاز آبی و آلی بررسی گردید. سپس با توجه به اینکه دبی عملیاتی تراشه نوع اول (شکل ۲) محدود می‌باشد برای افزایش دبی عملیاتی می‌بایست عرض کانال‌های موئین را کاهش داد ولی با توجه به محدودیت‌ها در روش حکاکی لیزر نمی‌توان کانال‌های با عرض کمتر از ۱۰۰ میکرومتر ایجاد کرد. در نتیجه برای افزایش دبی عملیاتی، از طراحی جدید، که شامل چهار جداساز موازی می‌باشد استفاده گردید (شکل ۴).

در سری اول آزمایش‌ها، برای بررسی تأثیر عرض کانال، با هدف یافتن عرض مناسب برای جداسازی، تراشه‌های میکروسیالی دوبعدی با کانال‌های موئین به عرض ۱۰۰، ۲۰۰، ۳۰۰ و ۴۰۰ میکرومتر طراحی و مورد آزمایش قرار گرفت. تراشه‌های میکروسیالی مورد بررسی در شکل ۲ (ردیف بالا) نشان داده شده است. در این آزمایش‌ها آب و هگزان با دبی ۱۰۰-۱۵۰ میکرو لیتر بر دقیقه با استفاده از پمپ سرنگی به داخل تراشه پمپ شد (دقت پمپ سرنگی بکار برده شده ۰.۱ میکرو لیتر بر دقیقه می‌باشد). در ادامه برای بررسی تأثیر طول بر میزان جداسازی، تراشه‌های میکروسیالی با کانال‌های موئین به طول ۱۰، ۱۵، و ۲۰ میلی‌متر طراحی و مورد آزمایش قرار گرفت. تراشه‌های میکروسیالی مورد بررسی در شکل ۲ (ردیف پایین) نشان داده شده است. در این آزمایش‌ها نیز، آب و هگزان با دبی ۱۰۰-۱۵۰ میکرو لیتر بر دقیقه با استفاده از پمپ سرنگی به داخل تراشه پمپ شد. توجه گردد که پیش از

در ادامه، قطعه شیشه‌ای دیگری، که شامل سوراخ‌هایی دریل شده جهت ورود و خروج سیال می‌باشد، بر روی شیشه حکاکی شده قرار داده شد. در نهایت، جهت اتصال دو قطعه شیشه‌ای از روش اتصال حرارتی استفاده گردید. برای ورود و خروج سیالات، اتصالات برنجی به تراشه میکروسیالی با چسب اپوکسی متصل گردیدند. تراشه میکروسیالی نوع اول ساخته شده در شکل ۳ (ردیف بالا) نشان داده شده است.

برای ساخت تراشه نوع دوم، که یک تراشه سه‌بعدی متشکل از سه لایه می‌باشد، در ابتدا دو طرح نشان داده شده در شکل ۴، بر روی دو شیشه سودا-لایم مجزا، به ضخامت ۴ میلی‌متر، توسط لیزر کربن دی اکسید حکاکی شدند. یکی از دو شیشه حکاکی شده لایه بالایی و شیشه دیگر لایه زیرین می‌باشد. لایه زیرین متشکل از چهار جداساز موئین بوده که توسط کانال‌هایی با عرض ۱ میلی‌متر به همدیگر متصل می‌باشند. پس از اتمام فرآیند حکاکی، قطعه‌های شیشه به مدت ۲ ساعت در محلول پیرانه قرار گرفتند. در ادامه یک لایه میانی به‌عنوان ارتباط‌دهنده لایه‌های زیرین و بالایی با دریل ۱۲ سوراخ بر روی یک قطعه شیشه‌ای ایجاد گردید. در نهایت، سه قطعه شیشه‌ای بر روی یکدیگر قرار گرفتند و با روش حرارتی به یکدیگر متصل گردیدند. برای ورود سیالات، از قاب‌های پلکسی و پیچ‌های حاوی لوله‌های مسی و برای خروج سیالات، اتصالات برنجی به تراشه میکروسیالی با چسب اپوکسی متصل گردیدند. تراشه میکروسیالی نوع دوم ساخته شده در شکل ۳ (ردیف پایین) نشان داده شده است.



جدول ۱. دبی‌های مختلف مورد آزمایش با تراشه میکروسیالی نوع دوم (شکل ۳) (دبی‌ها برحسب میکرولیتر بر دقیقه می‌باشند).

شماره آزمایش	دبی هگزان	دبی آب دوبار تقطیر
۱	۶۰۰	۶۰۰
۲	۸۰۰	۸۰۰
۳	۱۰۰۰	۱۰۰۰
۴	۶۰۰	۸۰۰
۵	۶۰۰	۱۰۰۰

توجه گردد که فازهای آبی و آلی پیش از ورود به تراشه های میکروسیالی نسبت به یکدیگر اشباع نشده بودند. هرچند در داخل تراشه های میکروسیالی، با توجه به میزان اختلاط قابل توجه، تا حدودی از همدیگر اشباع می گردند. از آنجائیکه حلالیت دو فاز در یکدیگر بسیار کم می باشد (برای مثال در دمای ۲۵ درجه سانتی گراد، میزان حلالیت آب در هگزان برابر با ۹۰ پی پی ام و میزان حلالیت هگزان در آب ۱۲.۴ پی پی ام گزارش شده است [۲۱])، حتی در صورت اشباعیت در داخل تراشه های میکروسیالی، نتایج جداسازی فازی به مقدار بسیار ناچیزی تحت تأثیر قرار می گیرند.

۵- نتایج و بحث

در این بخش ابتدا نتایج آزمایش‌ها با تراشه میکروسیالی نوع اول و تأثیر عوامل مختلفی همچون عرض، تعداد، و طول کانال‌های موئین بر میزان جداسازی دو فاز آبی و آلی بررسی می‌گردد. در ادامه نتایج آزمایش‌ها با تراشه میکروسیالی نوع دوم مطرح و تأثیر تعداد کانال‌های موئین بر میزان جداسازی دو فاز آبی و آلی مورد بررسی قرار می‌گیرد.

۵-۱- تراشه میکروسیالی نوع اول

همان‌طورکه در بخش‌های قبلی ذکر شد، در این پژوهش، آزمایش‌های جداسازی فازی با تراشه میکروسیالی نوع اول به‌منظور بررسی تأثیر عواملی همچون عرض، و طول کانال‌های موئین بر میزان جداسازی دو فاز آبی و آلی مورد مطالعه قرار گرفت. با انجام آزمایش‌ها مشاهده گردید که در کانال‌هایی با عرض ۲۰۰، ۳۰۰، و ۴۰۰ میکرومتر اسلاگ های هگزان به همراه آب وارد کانال‌های موئین شده و جداسازی دچار مشکل می‌گردد و این بدین معنی بود که شرط اول مربوط به مقاومت سیال، به دلیل تمایل هر دو فاز برای جریان به سمت کانال‌های موئین، تأمین می‌شود. ولی شرط مربوط به کوچک‌تر بودن اختلاف فشار در دو خروجی از فشار موئینگی،

هر آزمایش، به‌منظور بهبود خاصیت آب‌دوستی سطح، قبل از تزریق آب و هگزان به داخل تراشه، هیدروکلریک اسید ۰.۱ مولار به مدت ۲ ساعت به داخل تراشه تزریق می‌گردید. بعد از شستشو با هیدروکلریک اسید، آب دوبار تقطیر به مدت ۵ دقیقه به داخل تراشه تزریق می‌شد تا تمام کانال‌های موئین با آب دوبار تقطیر پر شوند. بعد از پر شدن کانال‌های موئین با آب دوبار تقطیر، آب و هگزان به داخل تراشه تزریق می‌شد.

در سری دوم آزمایش‌ها، آزمایش‌های جداسازی فازهای آبی و آلی با تراشه‌های سه‌بعدی، نشان داده‌شده در شکل ۴، انجام گردید. طراحی نشان داده‌شده در شکل ۴، متشکل از سه لایه می‌باشد که لایه زیرین متشکل از چهار جداساز موئین بوده که توسط کانال‌هایی با عرض ۱ میلی‌متر به همدیگر متصل هستند و آب با دبی‌های موردنظر وارد کانال‌ها شده و به چهار قسمت تقسیم می‌گردد. لایه دوم به‌عنوان ارتباط‌دهنده لایه های زیرین و بالایی بوده که متشکل از ۱۲ سوراخ به قطر ۲ میلی‌متر می‌باشد. هگزان از لایه بالایی توسط سوراخ‌های ایجادشده وارد کانال‌هایی با عرض ۳۰۰ میکرومتر می‌شود و در قسمت خروجی کانال‌های موئین نیز آب جداسازی شده توسط سوراخ‌های ایجادشده در قسمت لایه میانی وارد قسمت مثلثی شکل در لایه بالایی می‌شود. لایه بالایی نیز به‌عنوان پخش‌کننده هگزان در قسمت ورودی و جمع‌کننده آب خروجی از قسمت کانال‌های موئین عمل می‌کند. دبی‌های مختلف به کار گرفته‌شده در جدول ۱ ارائه شده است. برای آزمایش با تراشه میکروسیالی نوع دوم، سه طرح مختلف با ۲۵، ۳۵، و ۴۰ کانال موئین مورد بررسی قرار گرفتند. همه ابعاد در هر سه طرح یکسان می‌باشند. در سری دوم آزمایش‌ها، خروجی آب و هگزان از تراشه در استوانه‌های مدرج مجزا با دقت ۰.۱ میلی‌لیتر جمع‌آوری شده و سپس با اندازه‌گیری نسبت حجمی آب خروجی از قسمت موئین و کل آب ورودی به داخل تراشه، درصد جداسازی محاسبه شد. برای اطمینان از نتایج حاصل از آزمایش‌ها هرکدام از آزمایش‌ها دو بار تکرار گردید.

جدول ۲. میزان جداسازی فاز آبی در دبی‌های مختلف در تراشه میکروسیالی نوع دوم (دبی‌ها برحسب میکرولیتر بر دقیقه می‌باشند).

درصد جداسازی	تعداد کانال‌های موئین	دبی دبی هگزان	دبی آب
۳۸	۲۵	۶۰۰	۶۰۰
۴۹٫۵	۳۵		
۵۱	۴۰		
۳۱	۲۵	۸۰۰	۸۰۰
۴۵	۳۵		
۴۷	۴۰		
۳۰	۲۵	۱۰۰۰	۱۰۰۰
۴۶٫۳	۳۵		
۴۵٫۴	۴۰		
۳۸٫۵	۲۵	۶۰۰	۸۰۰
۶۱٫۵	۳۵		
۶۲٫۷	۴۰		
۳۹	۲۵	۶۰۰	۱۰۰۰
۶۱٫۵	۳۵		
۶۳	۴۰		

جدول ۳. مقایسه میزان جداسازی فاز آبی در تراشه میکروسیالی نوع دوم (دبی‌ها برحسب میکرولیتر بر دقیقه می‌باشند).

درصد جداسازی	دبی دبی هگزان	دبی آب	تعداد کانال‌های موئین
۳۸	۶۰۰	۶۰۰	۲۵
۳۱	۸۰۰	۸۰۰	
۳۰	۱۰۰۰	۱۰۰۰	
۳۸٫۵	۶۰۰	۸۰۰	
۳۹	۶۰۰	۱۰۰۰	
۴۹٫۵	۶۰۰	۶۰۰	۳۵
۴۵	۸۰۰	۸۰۰	
۴۶٫۳	۱۰۰۰	۱۰۰۰	
۶۱٫۵	۶۰۰	۸۰۰	
۶۱٫۵	۶۰۰	۱۰۰۰	
۵۱	۶۰۰	۶۰۰	۴۰
۴۷	۸۰۰	۸۰۰	
۴۵٫۴	۱۰۰۰	۱۰۰۰	
۶۲٫۷	۶۰۰	۸۰۰	
۶۳	۶۰۰	۱۰۰۰	

تأمین نمی‌گردد. در تراشه میکروسیالی با عرض کانال‌های موئین ۱۰۰ میکرومتر، هر دو شرط تأمین‌شده و جریان خروجی از کانال‌های موئین فقط آب بود.

برای افزایش میزان جداسازی و بررسی تأثیر طول کانال‌های موئین، چهار تراشه میکروسیالی نوع اول با عرض کانال‌های موئین ۱۰۰ میکرومتر با طول کانال‌های موئین مختلف ۵، ۱۰، ۱۵، و ۲۰ میلی‌متر ساخته و مورد آزمایش جداسازی فاز قرار گرفت. با انجام آزمایش‌ها مشاهده گردید که با کاهش طول کانال‌های موئین، به دلیل کاهش افت فشار در قسمت کانال‌های موئین شرط مربوط به کوچک‌تر بودن اختلاف افت فشار در دو خروجی از فشار موئینگی تأمین نشده، و در نتیجه هگزان به همراه آب وارد کانال‌های موئین می‌شود. در صورتی که طول کانال‌های موئین بیشتر از ۲۰ میلی‌متر باشد، مقاومت سیال در قسمت موئین بیشتر شده و دیگر در داخل کانال‌های موئین جریان پیدا نمی‌کند. بنابراین با استفاده از نتایج به‌دست‌آمده، مشاهده گردید که تراشه میکروسیالی با کانال‌های موئین به عرض ۱۰۰ میکرومتر و طول ۲۰ میلی‌متر، بهترین عملکرد را دارد.

۲-۵- تراشه میکروسیالی نوع دوم

در ادامه پژوهش، در سری دوم آزمایش‌ها قصد بر این بود که جداسازی فاز در دبی عملیاتی پیاده‌سازی گردد و با توجه به نتایج به‌دست‌آمده از آزمایش‌های جداسازی با تراشه میکروسیالی نوع اول عرض و طول کانال‌های موئین برابر با ۱۰۰ میکرومتر و ۲۰ میلی‌متر در نظر گرفته شدند اما تأثیر تعداد کانال‌های موئین مورد بررسی قرار گرفت. در این راستا سه تراشه میکروسیالی مجزا با تعداد کانال‌های موئین (۲۵، ۳۵، یا ۴۰) متفاوت ساخته شد.

نتایج جداسازی فاز تراشه میکروسیالی نوع دوم با ۲۵ کانال موئین در جدول ۲ نشان داده شده است. با توجه به جدول ۲ در دبی‌های با نسبت ۱:۱ هگزان و آب، میزان جداسازی با افزایش دبی کاهش می‌یابد. کاهش میزان جداسازی به این دلیل می‌باشد که با پر شدن کانال‌های موئین توسط آب، هگزان در کانال اصلی در مقابل نیروی موئینگی عمل کرده و مانع از ورود آب به کانال موئین می‌شود. همچنین با ثابت نگه‌داشتن دبی هگزان و با افزایش دبی آب میزان جداسازی افزایش می‌یابد. دلیل این امر افزایش مقاومت سیال آب در کانال اصلی نسبت به کانال‌های موئین می‌باشد که باعث می‌شود آب تمایل بیشتری برای جریان در کانال‌های

کانال‌های موئین باشد ($\Delta p_{mc} - \Delta p_{sep} < p_c$). نتایج نشان داد که برای تأمین شدن این شرایط می‌بایست عرض کانال‌های موئین کمتر از ۱۰۰ میکرومتر باشد. با بررسی طول کانال‌های موئین نیز مشخص شد که مناسب‌ترین طول ۲۰ میلی‌متر می‌باشد. برای افزایش دبی عملیاتی، تراشه میکروسیالی دیگری طراحی و ساخته گردید که شامل چهار میکروجداساز موئین موازی بود. تأثیر دبی و تعداد کانال‌های موئین بر بازده جداسازی فازی با تراشه میکروسیالی مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که با افزایش دبی هگزان میزان جداسازی فازی کاهش می‌یابد و با ثابت نگه‌داشتن دبی هگزان و افزایش دبی آب، میزان جداسازی فازی افزایش می‌یابد. با افزایش تعداد کانال‌های موئین از ۲۵ به ۳۵، میزان جداسازی فازی افزایش می‌یابد و با افزایش تعداد کانال‌های موئین به ۴۰ تغییر قابل‌توجهی در میزان جداسازی فازی مشاهده نگردید. با تراشه‌های میکروسیالی سه‌بعدی، بازده جداسازی فازی ۶۰ درصدی در دبی ۱۰۵ میلی‌لیتر بر دقیقه حاصل گردید.

مراجع

- [۱] G. M. Whitesides, "The origins and the future of microfluidics," *Nature*, vol. 442, pp. 368-373, 07/27/print 2006.
- [۲] M. A. Burns, B. N. Johnson, S. N. Brahmasandra, K. Handique, J. R. Webster, and M. Krishnan, "An Integrated Nanoliter DNA Analysis Device," *Science*, vol. 282, pp. 484-487, 1998.
- [۳] T. Thorsen, S. J. Maerkl, and S. R. Quake, "Microfluidic Large-Scale Integration," *Science*, vol. 298, pp. 580-584, 2002.
- [۴] C. F. Bucholz, D. Verhalten, and A. Schwefel, "Gesättigten, Auflösung des Salpetersauren Urans und des Wassers zu dem Uran Haltigen Schwefeläther," *Neues allgem Journal der Chemie*, vol. 4, pp. 134-160, 1805.
- [۵] D. S. Flett, "Solvent extraction in hydrometallurgy: the role of organophosphorus extractants," *Journal of Organometallic Chemistry*, vol. 690, pp. 2426-2438, 5/16/ 2005.
- [۶] G. Skarnemark, "Solvent Extraction and Ion Exchange in Radiochemistry," in *Handbook of Nuclear Chemistry*, A. Vértes, S. Nagy, Z. Klencsár, R. Lovas, and F. Rösch, Eds., ed: Springer US, 2011, pp. 240.۲۴۲۸-۳.
- [۷] S. E. Kentish and G. W. Stevens, "Innovations in separations technology for the recycling and re-use of liquid waste streams," *Chemical Engineering Journal*, vol. 84, pp. 149-159, 10/15/ 2001.
- [۸] M. N. Kashid, Y. M. Harshe, and D. W. Agar, "Liquid-Liquid Slug Flow in a Capillary: An Alternative to Suspended Drop or Film Contactors," *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 46, pp. 8420-8430, 2007/12/01 2007.
- [۹] J. P. Brody and P. Yager, "Diffusion-based extraction in a microfabricated device," *Sensors*

موئین داشته باشند. ولی با افزایش دبی آب از ۱۰۰۰ به ۱۲۰۰ میکرولیتر بر دقیقه موجب می‌شود که اسلاگ‌های هگزان نیز وارد کانال‌های موئین شود و جداسازی با مشکل مواجه شود. دبی بالای آب موجب حمل اسلاگ‌های هگزان به سمت کانال‌های موئین می‌شود. نتایج مشابهی با تراشه میکروسیالی نوع دوم با ۳۵ و ۴۰ کانال موئین نیز مشاهده می‌گردد که در جدول ۲ ارائه شده است.

مقایسه نتایج حاصل از جداسازی فازی در تراشه‌های میکروسیالی نوع دوم با ۲۵، ۳۵، و ۴۰ کانال موئین در جدول ۳ ارائه شده است. با افزایش تعداد کانال‌های موئین از ۲۵ به ۳۵ میزان جداسازی افزایش قابل‌توجهی یافته است. اما با افزایش تعداد کانال‌های موئین از ۳۵ به ۴۰ میزان جداسازی تغییر قابل‌توجهی نکرده است. با انجام آزمایش جداسازی فازی با تراشه میکروسیالی نوع دوم با ۴۰ کانال موئین مشاهده گردید که اسلاگ‌های هگزان وارد کانال‌های موئین شده و جداسازی

صورت نمی‌گیرد. به دلیل کاهش افت فشار در قسمت کانال موئین، معادله (۳) تأمین نشده و اسلاگ‌های هگزان وارد کانال موئین می‌شود.

با توجه به جدول ۳، با تراشه‌های میکروسیالی سه‌بعدی، بازده جداسازی فازی ۶۰ درصدی در دبی ۱۰۵ میلی‌لیتر بر دقیقه حاصل گردید که برای افزایش میزان جداسازی یک راهکار کاهش عرض کانال‌های موئین می‌باشد که برای این منظور می‌بایست روش‌های دیگر مانند حکاکی با اسید برای ساخت تراشه‌های میکروسیالی به‌جای حکاکی با لیزر مورد استفاده قرار گیرد.

۶- نتیجه‌گیری

در این پژوهش جداسازی فازهای آبی و آلی در سیستم‌های میکرو مورد بررسی آزمایشگاهی قرار گرفت. برای این منظور از تراشه‌های میکروسیالی شیشه‌ای که به روش حکاکی لیزر و اتصال حرارتی ساخته شدند، استفاده گردید. تراشه‌های میکروسیالی شامل یک کانال اصلی و تعدادی کانال موئین جانبی بودند. ترجیح بر این بود که فاز آبی به کانال‌های موئین جریان یابد و فاز آلی از کانال اصلی از تراشه خارج گردد. در این راستا، می‌بایست افت فشار هیدرودینامیکی فاز آلی در داخل کانال اصلی بیشتر از افت فشار هیدرودینامیکی در داخل کانال‌های موئین باشد ($\Delta p_{sep} < \Delta p_{mc}$) و همچنین میزان اختلاف افت فشار هیدرودینامیکی فاز آبی در کانال اصلی و کانال‌های موئین بایستی کمتر از فشار موئینگی در

- suspended drop or film contactors," *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 46, pp. 8420-8430, 2007.
- [۱۸] J. G. Kralj, H. R. Sahoo, and K. F. Jensen, "Integrated continuous microfluidic liquid-liquid extraction," *Lab on a Chip*, vol. 7, pp. 256-263, 2007.
- [۱۹] W. Gaakeer, M. De Croon, J. Van Der Schaaf, and J. Schouten, "Liquid-liquid slug flow separation in a slit shaped micro device," *Chemical engineering journal*, vol. 207, pp. 440-444, 2012.
- [۲۰] A. Günther, M. Jhunjhunwala, M. Thalmann, M. A. Schmidt, and K. F. Jensen, "Micromixing of miscible liquids in segmented gas-liquid flow," *Langmuir*, vol. 21, pp. 1547-1555, 2005.
- [۲۱] J. Polak and B. C.-Y. Lu, "Mutual solubilities of hydrocarbons and water at 0 and 25 C," *Canadian Journal of Chemistry*, vol. 51, pp. 4018-4023, 1973.
- and *Actuators A: Physical*, vol. 58, pp. 13-18, 1// 1997.
- [۱۰] T. Sato K, M. okeshi, T. Sawada, and K. T, "Molecular transport between two phases in a microchannel.," *Anal Sci*, vol. 16, pp. 455-456, 2000.
- [۱۱] M. Tokeshi and T. Kitamori", "Solvent extraction on chips, in *Handbook of Capillary and Microchip Electrophoresis and Associated Microtechniques*," *CRC Press*, pp. 1021-1035, 2007.
- [۱۲] P. Žnidaršič-Plazl and I. Plazl, "Steroid extraction in a microchannel system—mathematical modelling and experiments," *Lab on a Chip*, vol. 7, pp. 883-889, 2007.
- [۱۳] H. Miyaguchi, M. Tokeshi, Y. Kikutani, A. Hibara, H. Inoue, and T. Kitamori, "Microchip-based liquid-liquid extraction for gas-chromatography analysis of amphetamine-type stimulants in urine," *Journal of Chromatography A*, vol. 1129, pp. 105-110, 2006.
- [۱۴] P. Kuban, J. Berg, and P. K. Dasgupta, "Vertically stratified flows in microchannels. Computational simulations and applications to solvent extraction and ion exchange," *Analytical chemistry*, vol. 75, pp. 3549-3556, 2003.
- [۱۵] S. Bowden, P. Monaghan, R. Wilson, J. Parnell, and J. Cooper, "The liquid-liquid diffusive extraction of hydrocarbons from a North Sea oil using a microfluidic format," *Lab on a Chip*, vol. 6, pp. 740-743, 2006.
- [۱۶] T. Maruyama, H. Matsushita, J.-i. Uchida, F. Kubota, N. Kamiya, and M. Goto, "Liquid membrane operations in a microfluidic device for selective separation of metal ions," *Analytical chemistry*, vol. 76, pp. 4495-4500, 2004.
- [۱۷] M. Kashid, Y. Harshe, and D. W. Agar, "Liquid-liquid slug flow in a capillary: an alternative to

Separation of immiscible liquids using microfluidics

Ali Pourasghar Mohammadi, Aliasghar Mohammadi*, Dariush Bastani

Department of Chemical and Petroleum Engineering, Sharif University of Technology, Tehran, Iran

ABSTRACT

In this study, the continuous separation of hexane and water in micro-systems was investigated. For this purpose, two dimensional glass microfluidic chips were fabricated using laser ablation and thermal bonding method. The chips comprised of a main microchannel and few lateral micro channels. It was aimed to exit hexane and water from the, respectively, main and lateral micro channels. It was found that decreasing the width and increasing the number of the lateral micro channels, and increasing the flow rate of water result in increased separation. Also, increasing the flow rate of hexane and increasing the length of the lateral micro channels result in the reduction of the separation. In order to increase the operating flow rate of the capillary separation, three-dimensional microfluidic chips were fabricated by parallelization of four microscale capillary separators. With the three-dimensional microfluidic chips, the separation efficiency of up to 60% was achieved at the operating flow rate of 1.5 mL min^{-1} .

ARTICLE INFO

Article history:

Received: April 16, 2018

Received in revised form: September 4, 2018

Accepted: October 21, 2018

Key words:

separation
microfluidics
capillary

All right reserved.

* Corresponding author
amohammadi@sharif.edu