

ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΗ ΜΕΛΕΤΗ ΚΑΙΝΟΤΟΜΟΥ μ -ΑΝΑΜΙΚΤΗ

Α.Α. Μουζά*, Α.Τ. Κούπα, Γ.Γ. Στεργίου, Σ.Β. Παράς

Ερευνητική Ομάδα Σχεδιασμού Συσκευών Διεργασιών και Βιοϊατρικής Μηχανικής

Εργαστήριο Τεχνολογίας Χημικών Εγκαταστάσεων

Τμήμα Χημικών Μηχανικών, ΑΠΘ, Τ.Θ. 455, 54124, Θεσσαλονίκη

mouza@auth.gr, angelkoupa@auth.gr, gstergiou@auth.gr, paras@auth.gr

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Στην παρούσα μελέτη γίνεται η πειραματική αξιολόγηση της αποδοτικότητας ενός καινοτόμου μ -αναμικτή, ο οποίος έχει προηγουμένως σχεδιαστεί και μελετηθεί υπολογιστικά. Σε τέτοιου τύπου συσκευές ο αριθμός *Reynolds* είναι πολύ μικρός και συνεπώς η ανάμιξη ελέγχεται από τη διάχυση, και μπορεί να αυξηθεί με τη δημιουργία δευτερεύουσας ροής. Ο προτεινόμενος μ -αναμικτής αποτελείται από μία ελικοειδή διάταξη που εισάγεται σε σωλήνα κυκλικής διατομής και ευνοεί την ανάπτυξη στροβιλώδους ροής, η οποία οδηγεί σε αύξηση της επιφάνειας επαφής μεταξύ των προς ανάμιξη ρευστών και σε αύξηση της αποδοτικότητας της ανάμιξης. Στην πειραματική διάταξη ο βαθμός ανάμιξης παρακολουθείται με την καταγραφή της εξέλιξης μιας ακαριαίας αντίδρασης, της οποίας το προϊόν είναι έγχρωμο και η συγκέντρωσή του μετρείται από μ -φασματοφωτόμετρο. Η αποδοτικότητα του προτεινόμενου αναμικτή συγκρίθηκε με αυτήν ενός αναμικτή χωρίς τη διάταξη και τα αποτελέσματα έδειξαν ότι η προσθήκη της διάταξης δημιουργίας στροβιλώδους ροής ενισχύει σημαντικά την ανάμιξη παρά την δραστική μείωση το χρόνου επαφής μεταξύ των προς ανάμιξη ρευστών. Η πτώση πίεσης πρακτικά είναι σε χαμηλά επίπεδα (<200Pa) γεγονός που κάνει τον προτεινόμενο μ -αναμικτή κατάλληλο για την αύξηση της αποδοτικότητας της ανάμιξης και κατ' επέκταση τη χρήση του ως μ -αντιδραστήρα.

Λέξεις κλειδιά: μικροσυσκευές, ανάμιξη, φασματοφωτομετρία, αντιδραστήρας

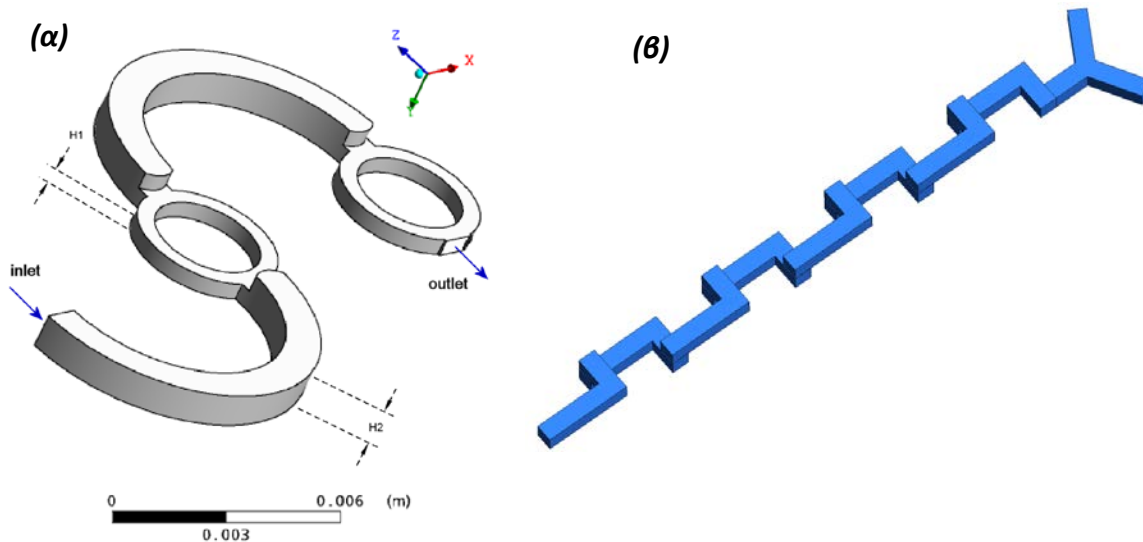
1. ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Η αιφόρος ανάπτυξη στηρίζεται στο σχεδιασμό, την κατασκευή και τη λειτουργία νέων παραγωγικών διαδικασιών που εξασφαλίζουν ενεργειακά, οικονομικά και περιβαλλοντικά οφέλη. Τα παραπάνω προϋποθέτουν τη βέλτιστη εκμετάλλευση των πρώτων υλών και τη βέλτιστη χρήση της ενέργειας. Στόχος είναι η ανάπτυξη νέων τεχνολογιών που εξασφαλίζουν την αιφόρο ανάπτυξη ανάμεσα στις οποίες είναι ο σχεδιασμός και η λειτουργία των μικροσυσκευών διεργασιών.

Οι μ -αντιδραστήρες είναι από τις ευρέως μελετώμενες μ -συσκευές επειδή έχουν σημαντικά πλεονεκτήματα έναντι των συμβατικών αντιδραστήρων, δηλαδή είναι αποδοτικότεροι, επιτρέπουν καλύτερο έλεγχο της διεργασίας και είναι εγγενώς ασφαλέστεροι. Επειδή προϋπόθεση για την αντίδραση αποτελεί η καλή ανάμιξη των αντιδρώντων, η μελέτη των μ -αντιδραστήρων ανάγεται σε μελέτη των μ -αναμικτών. Στους μ -αναμικτές, δεδομένης της πολύ μικρής χαρακτηριστικής διάστασης των αγωγών (<1mm), η ροή είναι στρωτή, οπότε η ανάμιξη των αντιδρώντων γίνεται **κυρίως** με μοριακά μέσα με συνέπεια να είναι πολύ αργή. Έτσι, έχουν προταθεί στη βιβλιογραφία διάφοροι καινοτόμοι τρόποι ενίσχυσης της απόδοσης της ανάμιξης (Hessel et al., 2005).

Με βάση τον τρόπο με τον οποίο ενισχύεται η ανάμιξη, οι μ -αναμικτές διακρίνονται σε ενεργητικούς και παθητικούς. Στους *ενεργητικούς* μ -αναμικτές χρησιμοποιείται μια εξωτερική πηγή ενέργειας (Hes-

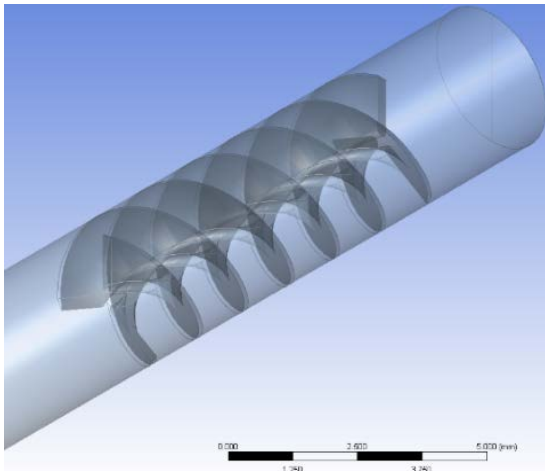
sel et al., 2005) ενώ στους **παθητικούς**, με τους οποίους ασχολείται και η παρούσα εργασία, χρησιμοποιούνται κατάλληλες διαμορφώσεις της γεωμετρίας. Στην περίπτωση αυτή η ενίσχυση της ανάμιξης επιτυγχάνεται με τη δημιουργία δευτερεύουσας ροής, η οποία οφείλεται στην ύπαρξη είτε καμπύλων τμημάτων, είτε διαμορφώσεων στο εσωτερικό του αγωγού. Βασικό πλεονέκτημα των παθητικών μ -αναμικτών είναι το χαμηλό κόστος κατασκευής και ο απλός τρόπος λειτουργίας. Σε προηγούμενες εργασίες στο Εργαστήριο ΤΧΕ [π.χ. (Mouza et al., 2008), (Kanaris et al., 2015)] μελετήθηκε τόσο πειραματικά όσο και υπολογιστικά η ποιότητα της ανάμιξης για διάφορους τύπους παθητικών μ -αναμικτών. Στο **Σχήμα 1** παρουσιάζονται δύο τύποι παθητικών μ -αναμικτών (δηλ. *Dean-type* και *L-type*), τα λειτουργικά χαρακτηριστικά των οποίων μελετήθηκαν διεξοδικά στις προηγούμενες εργασίες.



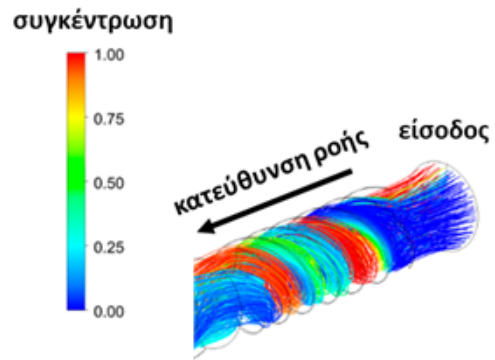
Σχήμα 1. Τυπικοί παθητικοί μ -αναμίκτης: α) *Dean-type* & β) *L-type*.

Η συμβολή στην ανάμιξη διατάξεων που προκαλούν στροβιλώδη ροή είναι γνωστή από τη μακροκλίμακα. Επιπλέον είναι γνωστό (Pahl & Muschelknautz, 1982) ότι στατικοί ελικοειδείς αναμίκτης χρησιμοποιούνται στη χημική βιομηχανία για την ανάμιξη υγρών που ρέουν σε στρωτή ροή και ότι γεωμετρικές τροποποιήσεις στον ίδιο τον αναμίκτη μπορούν να βελτιώσουν την απόδοση της ανάμιξης. Αντίστοιχο αποτέλεσμα έχει και η εισαγωγή εμποδίων που τροποποιούν το πεδίο ροής μέσα στον αναμίκτη (Rawool et al., 2006).

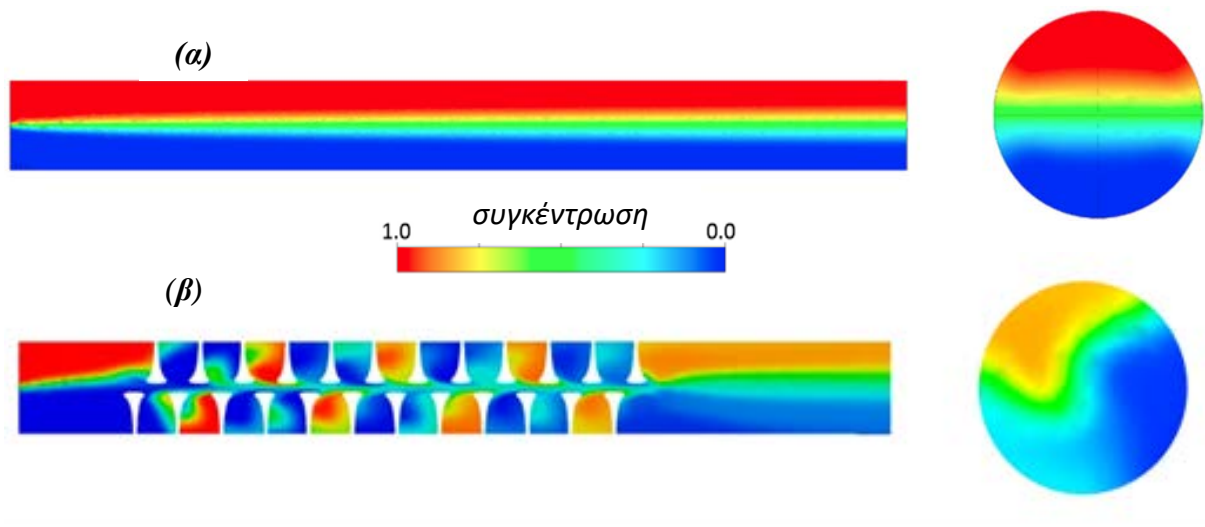
Σε προηγούμενη εργασία (Kanaris & Mouza, 2018) μελετήθηκε, με χρήση Κώδικα Υπολογιστικής Ρευστοδυναμικής (*CFD*), η αποτελεσματικότητα ενός νέου τύπου μ -αναμίκτη, ο οποίος περιέχει **ελικοειδή** διάταξη (**Σχήμα 2**) που **ενισχύει** την ανάμιξη των συστατικών μέσω της δημιουργίας στροβιλώδους ροής (**Σχήμα 3**). Διερευνήθηκε η επίδραση των γεωμετρικών παραμέτρων της ελικοειδούς διάταξης (βήμα και μήκος των πτερυγίων της έλικας) και του αριθμού *Reynolds* (*Re*) στην ποιότητα της ανάμιξης. Οι προσομοιώσεις έδειξαν ότι η προσθήκη της συσκευής δημιουργίας στροβιλώδους ροής βελτιώνει σημαντικά την αποτελεσματικότητα της ανάμιξης, ενώ συγχρόνως η πτώση πίεσης διατηρείται σε χαμηλά επίπεδα (< 200 Pa). Από το **Σχήμα 4**, όπου παρουσιάζεται η κατανομή της συγκέντρωσης του ενός των αντιδρώντων με και χωρίς την προσθήκη της ελικοειδούς διάταξης, είναι εμφανής η επίδραση της προτεινόμενης διάταξης. Τέλος, με βάση τα αποτελέσματα των προσομοιώσεων και χρησιμοποιώντας μεθοδολογία *Επιφανείας Απόκρισης* (*Response Surface Methodology*, *RSM*), διαμορφώθηκαν κατάλληλες σχεδιαστικές εξισώσεις που, για δεδομένες τιμές των σχεδιαστικών παραμέτρων, υπολογίζουν την ποιότητα της ανάμιξης και την πτώση πίεσης σε έναν τέτοιου τύπου μ -αναμίκτη, έτσι ώστε να μπορούν να επιλεγθούν οι βέλτιστες τιμές των σχεδιαστικών παραμέτρων. Σκοπός της παρούσας εργασίας είναι να κατασκευασθεί ο μ -αναμίκτης που περιέχει την ελικοειδή διάταξη και να μελετηθεί πειραματικά η ποιότητα της ανάμιξης.



Σχήμα 2. Σχηματική παράσταση του μ-αναμίκτη (CFD).



Σχήμα 3. Τυπική συγκέντρωση κατά μήκος των ροϊκών γραμμών στον μ-αναμίκτη με την ελικοειδή διάταξη ($Re=10$).



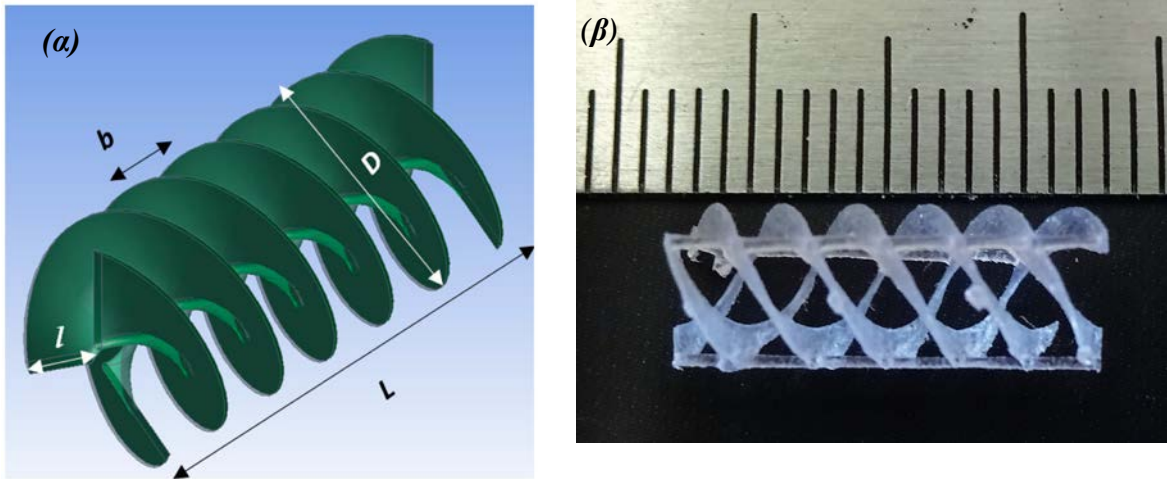
Σχήμα 4. Επίδραση της ελικοειδούς διάταξης στην πορεία της ανάμιξης δύο υδατικών διαλυμάτων ($Re=10$). Κατανομή της συγκέντρωσης στο επίπεδο συμμετρίας και στη διατομή της εξόδου: α) χωρίς & β) με την ελικοειδή διάταξη.

2. ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΗ ΔΙΑΔΙΚΑΣΙΑ

Με βάση τα αποτελέσματα του CFD κατασκευάστηκε με τρισδιάστατη εκτύπωση (εκτυπωτής *Formlabs® Form2*) ελικοειδής διάταξη (Σχήμα 5) της οποίας το συνολικό μήκος ($L=1.6\text{cm}$), η διάμετρος ($D=4.5\text{mm}$) όπως και το βήμα ($b=3\text{mm}$) και το πλάτος ($l=2\text{mm}$) των πτερυγίων της έλικας αντιστοιχούν στα βέλτιστα μεγέθη που υπολογίστηκαν κατά τη προσομοίωση. Η ελικοειδής διάταξη είναι κατασκευασμένη από την εμπορική ρητίνη *Form 2 Clear Resin* της *Formlabs®*. Ο μ-αναμίκτης αποτελείται από γυάλινο σωλήνα εσωτερικής διαμέτρου $D=5\text{mm}$ στο εσωτερικό του οποίου τοποθετήθηκε η ελικοειδής διάταξη.

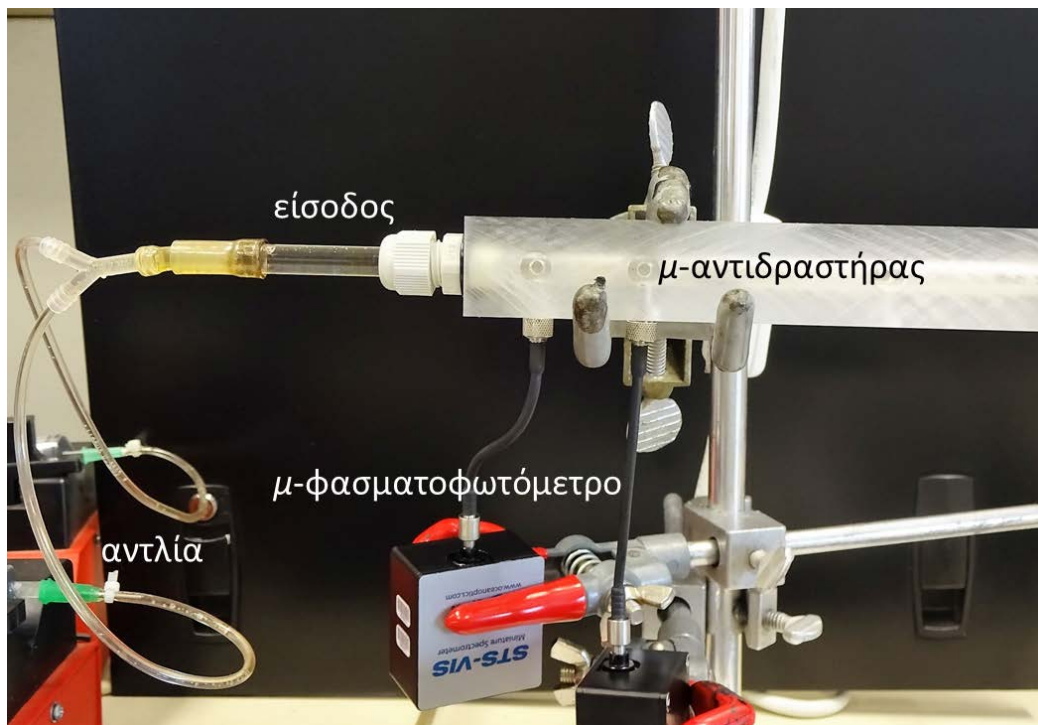
Στους μ-αναμίκτες είναι σύνηθες να ελέγχεται η πρόοδος της ανάμιξης παρακολουθώντας την πρόοδο μιας *ακαριαίας* αντίδρασης το προϊόν της οποίας είναι έγχρωμο. Στην παρούσα εργασία στον μ-αναμίκτη/αντιδραστήρα διοχετεύονται δύο ρεύματα η ανάμειξη των οποίων μελετάται σύμφωνα με τη μέθοδο που προτείνουν οι Hessel et al. (2003). Η μέθοδος αυτή χρησιμοποιείται ευρέως για τη μέτρηση της απόδοσης μ-αναμικτών και βασίζεται στην αντίδραση διαλύματος άχρωμων ιόντων σιδήρου

(Fe^{3+}) με διάλυμα θειοκυανικού ιόντος (SCN^-). Το προϊόν της αντίδρασης έχει έντονα κόκκινο χρώμα και έτσι η πρόοδος της ανάμιξης μπορεί να προσδιορισθεί παρακολουθώντας τη συγκέντρωση του έγχρωμου προϊόντος μέσω της απορρόφησης. Είναι γνωστό ότι σύμφωνα με το νόμο των Beer-Lambert ο βαθμός απορρόφησης αραιού έγχρωμου διαλύματος είναι γραμμική συνάρτηση της συγκέντρωσης του έγχρωμου συστατικού στο διάλυμα.



Σχήμα 5. Η διάταξη δημιουργίας στροβιλώδους ροής: α) σχηματική παράσταση, β) η διάταξη κατασκευασμένη με τρισδιάστατη εκτύπωση.

Στην πειραματική διάταξη που χρησιμοποιήθηκε (Σχήμα 6) ο μ-αντιδραστήρας τοποθετήθηκε σε περίβλημα τετραγωνικής διατομής από PMMA ώστε να είναι δυνατή η τοποθέτηση των αισθητήρων των φασματοφωτομέτρων που καταγράφουν την απορρόφηση. Για την παρακολούθηση της απορρόφησης χρησιμοποιήθηκαν δυο μ-φασματοφωτόμετρα (STS-VIS της εταιρείας Ocean Optics®) (Σχήμα 7).



Σχήμα 6. Η πειραματική διάταξη.

Οι μετρήσεις έγιναν στην ορατή περιοχή του φάσματος (400-700nm), ενώ τα φασματοφωτόμετρα βαθμονομήθηκαν με βάση την απορρόφηση διαλυμάτων γνωστής συγκέντρωσης έγχρωμου προϊόντος της αντίδρασης. Πιο συγκεκριμένα, για τη βαθμονόμηση, παρασκευάστηκαν τέσσερα υδατικά

διαλύματα συγκέντρωσης 0.00125, 0.0025, 0.0035 και 0.005M σε προϊόν και εξήχθη γραμμική σχέση μεταξύ απορρόφησης και συγκέντρωσης. Οι συγκεντρώσεις των διαλυμάτων που χρησιμοποιήθηκαν, ήταν 0.813g/L, 0.005M $FeCl_3$, (J&K[®]), καθαρότητας 98% και 0.405g/L, 0.005 M $NaSCN$, (J&K[®]), καθαρότητας 98% [Hessel et al. (2003)]. Οι παροχές των δύο προς αντίδραση ρευμάτων ήταν πάντοτε ίσες ενώ στον αντιδραστήρα η τιμή του Re στον ήταν 2-27. Οι τιμές της πυκνότητας και του ιξώδους των υδατικών διαλυμάτων είναι πρακτικά αυτές του νερού. Τα ρευστά τροφοδοτούνται με δυο αντλίες σύριγγας τύπου *ALADDIN-1000* της *World Precision Instruments*[®]. Το πρώτο φασματοφωτόμετρο τοποθετήθηκε πριν τη διάταξη δημιουργίας στροβιλώδους ροής και χρησιμοποιήθηκε ως αναφορά, ενώ το δεύτερο, από το οποίο λήφθηκαν οι μετρήσεις, τοποθετήθηκε 10cm κατάντη του σημείου επαφής των δύο προς ανάμιξη ρευστών και μετά την ελικοειδή διάταξη (**Σχήμα 6**).

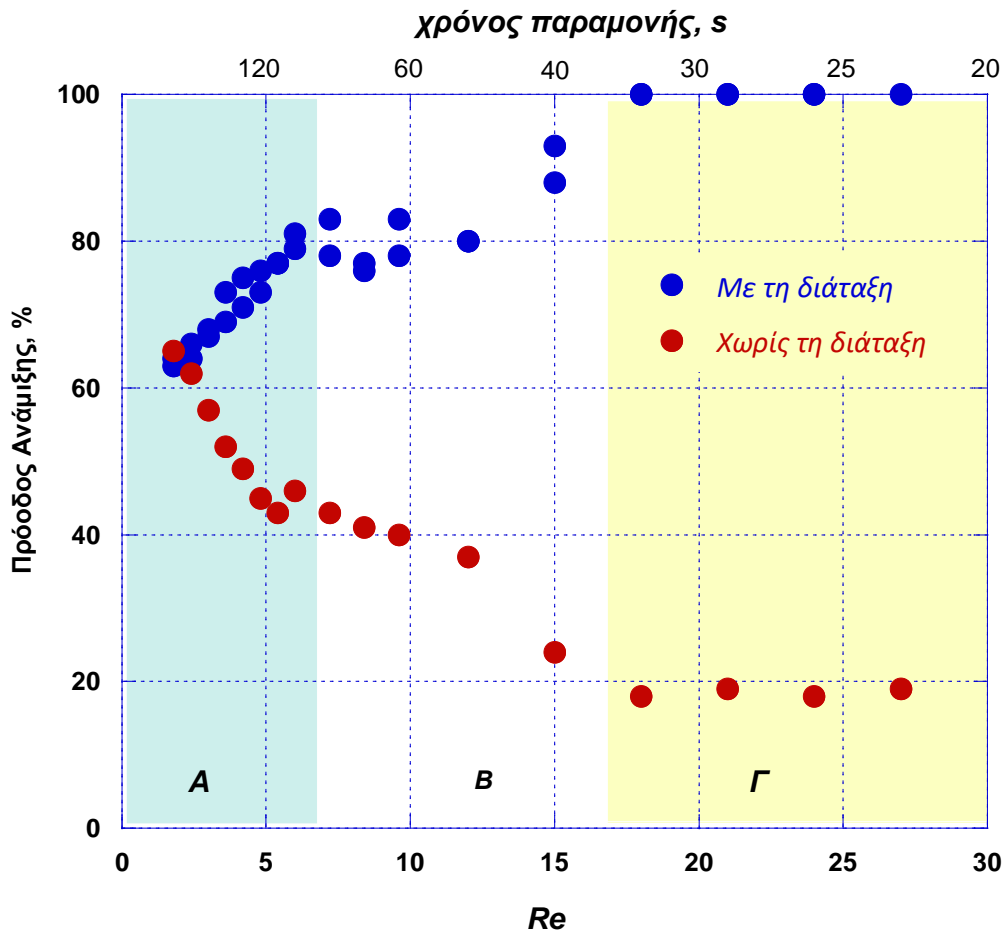


Σχήμα 7. Φωτογραφία του μ-φασματοφωτόμετρου.

3. ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ

Διεξήχθησαν πειράματα με και χωρίς την προσθήκη της διάταξη δημιουργίας στροβιλώδους ροής, στα οποία παρακολουθείται η συγκέντρωση του έγχρωμου προϊόντος πριν και μετά την ελικοειδή διάταξη. Έγιναν πειράματα για διάφορες παροχές των προς ανάμιξη ρευστών που αντιστοιχούν σε ένα εύρος αριθμών Re στον αναμίκτη (3-27). Πειράματα έγιναν τόσο με όσο και χωρίς την προσθήκη της ελικοειδούς διάταξης ώστε να είναι δυνατή η εκτίμηση της συνεισφοράς της διάταξης. Είναι εμφανές ότι η προσθήκη της προτεινόμενης διάταξης ενισχύει την ανάμιξη. Είναι γνωστό ότι η ανάμιξη ενισχύεται με την αύξηση της επιφάνειας ή/και του χρόνου επαφής μεταξύ των δύο ρευστών οπότε η προσθήκη της διάταξης ενισχύει την ανάμιξη λόγω της ανάπτυξης στροβιλώδους ροής (**Σχήμα 3**).

Στο **Σχήμα 8** παρουσιάζεται η επίδραση της ελικοειδούς διάταξης στην **πρόοδο** της ανάμιξης για διάφορες τιμές του αριθμού Re . Για πολύ μικρές παροχές ($Re \approx 2-3$) η πρόοδος της ανάμιξης δεν φαίνεται να επηρεάζεται από την ελικοειδή διάταξη, δεδομένου ότι η στροβιλώδης ροή αποσβένεται γρήγορα και συνεπώς το ελέγχον στάδιο είναι ο χρόνος παραμονής. Καθώς αυξάνεται η τιμή του Re (**Σχήμα 8**, περιοχή *A*) παρατηρούμε ότι, αν και μειώνεται ο χρόνος παραμονής, η ανάμιξη ενισχύεται, γιατί η προσθήκη της διάταξης αυξάνει την ένταση της στροβιλώδους ροής. Αντίθετα στον αναμίκτη χωρίς τη διάταξη, η ανάμιξη συνεχίζει να μειώνεται με την αύξηση του Re , δεδομένου ότι ελέγχεται μόνο από το χρόνο παραμονής. Στην περιοχή *B* (**Σχήμα 8**) η ανάμιξη συνεχίζει να ενισχύεται με την αύξηση του Re , αλλά με μικρότερο ρυθμό, λόγω της αλληλεπίδρασης αφενός της αύξησης της έντασης της στροβιλώδους ροής και αφετέρου της μείωσης του χρόνου παραμονής. Τέλος στην περιοχή *Γ*, δηλαδή για μεγαλύτερες τιμές της παροχής, η ανάμιξη είναι πλήρης παρά τη δραστική μείωση του χρόνου παραμονής. Στην περιοχή *Γ* η ανάμιξη στον μ-αναμίκτη χωρίς τη διάταξη είναι πολύ μικρή, λόγω της μείωσης του χρόνου παραμονής.



Σχήμα 8. Επίδραση της διατάξης στην πρόοδο της ανάμιξης.

4. ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ

Τα πειραματικά αποτελέσματα συμφωνούν ποιοτικά με τις προσομοιώσεις που έγιναν με *CFD* στην προηγούμενη εργασία, δηλαδή η προσθήκη της προτεινόμενης διάταξης, που έχει ως αποτέλεσμα τη δημιουργία στροβιλώδους ροής, ευνοεί την ανάμιξη των ρευστών. Σε σχετικά υψηλές τιμές του αριθμού *Re* (δηλαδή σχετικά υψηλές παροχές ρευστών), η πρόοδος της ανάμιξης φτάνει μέχρι το 100%. Ωστόσο, για χαμηλές τιμές του αριθμού *Re* η ανάμιξη εξαρτάται και από τον χρόνο παραμονής (εκτός από τη στροβιλώδη ροή) και αυξάνεται γραμμικά συναρτήσει του αριθμού *Re*.

Είναι σημαντικό να αναφερθεί πως τα αποτελέσματα της παρούσας εργασίας φαίνονται ευνοϊκότερα από αυτά της αντίστοιχης υπολογιστικής μελέτης. Αυτό θεωρούμε ότι οφείλεται στην απλοποιητική παραδοχή που έγινε στην υπολογιστική μελέτη ότι ο συντελεστής διάχυσης μεταξύ των ρευστών ήταν ο συντελεστής αυτοδιάχυσης του νερού. Υπό πραγματικές συνθήκες ωστόσο, όπως αυτές στα πειράματα στο Εργαστήριο, οι συντελεστές διάχυσης των ιόντων που αντιδρούν αναμένεται να είναι σημαντικά μεγαλύτεροι από αυτόν της αυτοδιάχυσης του νερού. Έτσι, σε επόμενες προσομοιώσεις θα ελεγχθεί η αποδοτικότητα του αναμίκτη για μεγαλύτερες τιμές των συντελεστών διάχυσης.

Ευχαριστίες: Οι συγγραφείς θα ήθελαν να ευχαριστήσουν τους Τεχνικούς του Εργαστηρίου κ.κ. Τρ. Τσιλιπέρα και Φ. Λαμπρόπουλο για την κατασκευή και εγκατάσταση της πειραματικής διάταξης.

Βιβλιογραφία

- Bourne J.R., Yu, S. (1994) Investigation of micromixing in stirred tank reactors using parallel reactions *Ind. Eng. Chem. Res.* **33**(1), pp.41–55.
- Hessel, V., Hardt, S., Löwe, H. and Schönfeld, F. (2003). Laminar mixing in different interdigital micromixers: I. Experimental characterization. *AIChE Journal*, **49**(3), pp.566-577.
- Hessel, V., Löwe, H., Schönfeld, F. (2005) Micromixers—a review on passive and active mixing principles. *Chemical Engineering Science*, **60**, pp.2479-2501.
- Kanaris, A.G., Mouza, A.A. (2018) Design of a novel μ -mixer. *Fluids*, **3**(10).
- Kanaris, A. G., and Mouza, A. A., (2011) Numerical investigation of the effect of geometrical parameters on the performance of a micro-reactor, *Chemical Engineering Science*, **66**(21), pp.5366-5373.
- Kanaris, A.G., Stogiannis, I.A., Mouza, A.A., Kandlikar, S.G. (2015) Comparing the mixing performance of common types of chaotic micromixers: a numerical study. *Heat Transfer Engineering* **36**(13), pp.1122-1131.
- Mouza, A.A., Patsa, C-M. and Schönfeld, F. (2008) Mixing performance of a chaotic micromixer. *Chem. Eng. Res. Des.* **86**, pp.1128-1134.
- Pahl, M.H.; Muschelknautz, E. (1982), Static mixers and their applications. *Int. Chem. Eng.* **92**, pp.205–228.
- Rawool, A.S.; Mitra, S.K.; Kandlikar, S.G. (2006), Numerical simulation of flow through microchannels with designed roughness. *Microfluid. Nanofluid.* **2**, pp.215–221.

EXPERIMENTAL STUDY OF A NOVEL μ -MIXER

A.A. Mouza*, A.T. Koupa, Y.G. Stergiou, S.V. Paras

Process Equipment Design and Biomedical Engineering Group
Chemical Process and Plant Design Laboratory
Chemical Engineering Dept., AUTH, 54124, Thessaloniki, Greece

**mouza@auth.gr, angelkoupa@auth.gr, gstergiou@auth.gr, paras@auth.gr*

ABSTRACT

This study investigates the mixing efficiency of a novel μ -mixer/reactor, which consists of a swirling flow generating helical device inserted into a straight circular tube. The efficacy of the proposed μ -mixer has been previously numerically examined. In this type of devices, the Reynolds number is low, mixing is diffusion dominated and can only be enhanced by the creation of secondary flows. The characterisation of the mixing efficiency is achieved using a spectrophotometric method. Namely, the progress of mixing is monitored by measuring the absorption, i.e. the concentration, of the colored product of a fast-chemical reaction. Experiments were conducted for various Re number values. The results have shown that the swirl-flow generator augments the mixing efficiency, particularly for flows with $Re < 20$, where mixing increases with Re , or equally the flow rate, despite the corresponding decrease of residence time. For $Re > 20$ the fluids are practically fully mixed. The results were compared with the mixing efficiency achieved using the same tube without the helical insert. It was found that in this case, the progress of mixing decreases when Re increases because the residence time, i.e. the contact time between the two fluids, decreases.

Keywords: μ -equipment, microfluidics, mixing, spectrophotometry, reactor.