

Research Paper

Experimental study of the mass transfer effect on the hydrodynamics of single drops in the chemical system of normal butanol/succinic acid/water

Mohammad Fatemimanesh¹, Mostafa Narimani^{1,*}, Zoha Azizi^{2,3}, Ali Borsalani¹

¹ Department of Chemical Engineering, Omidiyeh Branch, Islamic Azad University, Omidiyeh, Iran

² Department of Chemical Engineering, Mahshahr Branch, Islamic Azad University, Mahshahr, Iran

³ Institute of Mining, Oil and Energy, Mahs.C., Islamic Azad University, Mahshahr, Iran

ARTICLE INFO

GRAPHICAL ABSTRACT



ABSTRACT

Research Subject: The flow of two immiscible liquids has garnered significant interest over the past few decades due to its relevance in various industrial applications, including chemical, petrochemical, food, and other process industries. It is particularly encountered in the water-lubricated transport of high-viscosity oil through pipelines. One of the simplest methods for studying the mass transfer coefficient in a liquid–liquid system involves a single droplet rising through a second, stationary phase. While this approach is well understood for nearly spherical droplets without surface turbulence or oscillations, it remains complex for ellipsoidal droplets exhibiting oscillatory motion, particularly in systems characterized by low interfacial tension.

Research Approach: This study investigates the effect of mass transfer on the velocity and shape of droplets in a chemical system composed of normal butanol, succinic acid, and water. Several variables are explored, including the dispersed phase flow rate, droplet size, and succinic acid concentration within the dispersed phase. Experiments were carried out using the single-drop method in an extraction column, employing normal butanol droplets with diameters ranging from 0.3 mm to 1.3 mm and Reynolds numbers below 300.

Main Results: The results reveal that mass transfer significantly influences droplet velocity, delaying the attainment of terminal velocity. Despite deformation, the droplet regime remains unchanged. The low interfacial tension in the system leads to the formation of oval-shaped droplets, with aspect ratios decreasing to as low as 0.4. However, under mass transfer conditions, droplets become wider and more spherical, resulting in a 50% increase in aspect ratio at the highest succinic acid concentration and with the largest nozzle size, compared to conditions without mass transfer. Terminal velocity and droplet deformation were further analyzed using dimensionless numbers, including the Reynolds number, Eötvös number, and Weber number.

* Corresponding author: Mostafa.narimani@iau.ac.ir, Mostafa.narimani@gmail.com

Copyright@ 2025, The Authors. This open-access article is published under the terms of the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International License which permits Share (copy and redistribute the material in any medium or format) and Adapt (remix, transform, and build upon the material) under the Attribution-NonCommercial terms.



آدرس صفحه: <u>www.arcpe.modares.ac.ir</u>

مقاله تحقيقاتى

مطالعه آزمایشگاهی تأثیر انتقال جرم بر هیدرودینامیک قطرات منفرد برای سامانه شیمیایی نرمالبوتانول-اسیدسوکسینیک-آب

محمد فاطمیمنش ^۱، مصطفی نریمانی ^۱ ^۹ ضحی عزیزی^۲ ۲ ملی برسلانی ^۱ ۲ گروه مهندسی شیمی، واحد امیدیه، دانشگاه آزاد اسلامی، امیدیه، ایران ۲ گروه مهندسی شیمی، واحد ماهشهر، دانشگاه آزاد اسلامی، ماهشهر، ایران ۲ دانشکده معدن، نفت، و انرژی، واحد ماهشهر، دانشگاه آزاد اسلامی، ماهشهر، ایران

چکیدہ

موضوع تحقیق: جریان دو مایع امتزاجناپذیر در چند دهه گذشته توجه زیادی را به خود جلب کرده است. این جریان در بسیاری از فرآیندهای صنعتی مانند صنایع شیمیایی، پتروشیمی، غذایی و فرآوری کاربرد دارد و به طور گسترده در انتقال روغن با ویسکوزیته بالا از طریق خطوط لوله که توسط آب روانکاری میشود، دیده میشود. با اینحال، یکی از روشهای ساده مطالعه ضریب انتقال جرم و هیدرودینامیک جریان در سامانه شیمیایی مایع-مایع، روش تکقطره در حال صعود در فاز دوم ساکن است. اگرچه شاید این مبحث در مورد قطرات با شکل تقریباً کروی و فاقد نوسان و آشفتگیهای سطحی کاملاً شناخته شده باشد، اما هنوز در مورد قطرات بیضوی و دارای نوسان در فازهای با کشش بینسطحی پایین پیچیدگی دارد.

روش تحقیق: در این مطالعه آزمایشگاهی، تأثیر انتقال جرم بر سرعت و شکل قطره در سامانه شیمیایی نرمال وتانول⊣سیدسوکسینیک-آب بررسی شده است. متغیرهای مورد مطالعه، شدت جریان فاز پراکنده، اندازه قطره و غلظت اسیدسوکسینیک در فاز پراکنده است. آزمایشها به روش تکقطره در ستون استخراج انجام شد. محدوده قطر قطرات نرمال وتانول در محدوده شدت جریان مورد آزمایش، بین ۱/۳ تا ۳/۰ میلیمتر و محدوده رینولدز کمتر از ۳۰۰ بود.

نتایج اصلی: نتایج نشان داد که سرعت حد قطره در حضور و غیاب انتقال جرم متفاوت است. انتقال جرم باعث تأخیر در رسیدن به سرعت حد می شود، همچنین رژیم قطره را با وجود تغییرشکل آن حفظ می کند. کشش بین سطحی کم این سامانه شیمیایی باعث تشکیل قطرات بیضی شکل شد و نسبت ابعادی تا ۲۰/۶ کاهش یافت، اما در حضور انتقال جرم، قطرات پهنای بیشتری پیدا کرده، به سمت کروی تر شدن متمایل شدند و نسبت ابعادی در بیشترین غلظت و در بزرگترین افشانک (Nozzle) استفاده شده حدود ۲۰٪ نسبت به غیاب انتقال جرم افزایش یافت. سرعت حد و تغییر شکل قطرات در قالب اعداد بی بعد رینولدز (Re)، اوتوس (Eo) و وبر (We) مطالعه شد.

كليدواژهها	اطلاعات مقاله
سرعت لحظهای	دریافت: ۱۴۰۳/۰۴/۲۹
سرعت حد	پذیرش: ۱۴۰۳/۱۰/۱۲
انتقال جرم	دسترس آنلاین: ۱۴۰۴/۰۲/۳۱
فاز پيوسته	ISSN: 2588-5316 Online ISSN: 2588-5324
تغييرشكل قطره	

* نويسنده مسئول: <u>Mostafa.narimani@iau.ac.ir</u>, <u>Mostafa.narimani@gmail.com</u>

کپیرایت © ۲۰۲۵ نویسندگان . این مقاله بهصورت دسترسی آزاد منتشر شده و تحت مجوز بینالمللی Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 قرار دارد. بر اساس این مجوز، شما میتوانید این مطلب را در هر قالب و رسانهای کپی، بازنشر و بازآفرینی کنید و یا آن را ویرایش و بازسازی نمایید، به شرط آنکه نام نویسنده را ذکر کرده و از آن برای مقاصد غیرتجاری استفاده کنید.

۱ مقدمه

استخراج مایع-مایع بهدلیل رشد تقاضا برای محصولات حساس به دما، نیاز به مواد خالص تر، تجهیزات مؤثر تر آن و نیز وجود حلال هایی با گزینش-پذیری بالاتر، اهمیت فزاینده ای یافته است. بیشترین کاربرد استخراج مایع-مایع در صنایع نفتی است، زیرا در این صنایع، بیشتر باید خوراک های مایع را بر اساس گونه شیمیایی آن ها (برای نمونه آلیفاتیک، آروماتیک و نفتی) جدا کرد و جداسازی بر اساس وزن مولکولی یا فشار بخار، کاربرد چندانی ندارد [1]. دستگاههای استخراج مایع-مایع باید توانایی ایجاد تماس هرچه بیشتر بین دو فاز را داشته باشند تا انتقال جرم ماده حل شده، بین دو فاز انجام شود و سرانجام دو فاز به طور کامل از هم جدا شوند. هدف استخراج مایع-مایع، جداسازی و تخلیص ماده به وسیله انتقال جرم ترجیحی یکی از اجزا از یک فاز مایع به فاز مایع دیگر است. از این رو سطح تماس و سرعت انتقال جرم، دو عامل بسیار مؤثر هستند.

یکی از روش های ساده مطالعه ضریب انتقال جرم در سامانه شیمیایی مایع-مایع، روش تک قطره در فاز دوم ساکن است. مطالعه شکل قطره های متحرک به منظور درک دینامیک این قطره ها مفید است، زیرا نیروی پَسار (Drag) وارد بر قطره ها به شکل آن ها در حین حرکت در سیال دیگر بستگی دارد. شکل قطره های مایع که در سیال دیگری در حال حرکت هستند، وابسته به موازنه فشار هیدرودینامیکی اعمال شده توسط سرعتهای نسبی قطره و سیال فاز پیوسته و نیروهای سطحی است که تمایل به کروی کردن قطره اینرسی و نیروهای گرانرو در سطح تماس تعیین می شود و در شرایط مختلف سرعت حد (Terminal velocity) آن (سرعت حد در لحظه تعادل بین نیروی شناوری و نیروی پَسار وارد بر قطره حاصل می شود و معادل سرعت متوسط شناوری و نیروی پَسار وارد بر قطره حاصل می شود و معادل سرعت متوسط میزان ظرفیت دستگاه استخراج مایع است، زیرا سرعت مقره ها در فاز پیوسته، یکی از جنبه های مهم استخراج مایع است، زیرا سرعت فاز پراکنده،

شرودر و کینتنر [۲] شکل قطرهها را در رینولدزهای پایین و در گرانرویهای مختلف سیال فاز پیوسته، مورد مطالعه قرار دادند. آنها مشاهده کردند که شکل قطرهها در قطرهای معادل (b) کوچک، تقریباً کروی است. اما با افزایش اندازه قطرهها، تغییر شکل آنها نیز افزایش مییابد و قطره بهصورت بیضی پهن متقارن مشاهده میشود. با افزایش بیشتر قطر، قطره بهصورت مکلهای غیرمعمول در میآید. تغییر شکل قطره اغلب در ناحیه نزدیک قله منحنی سرعت نهایی قطره بر حسب قطر قطره اغلب در ناحیه نزدیک قله با افزایش اندازه قطره، تغییر شکل، لرزش، نوسان و ارتعاش حائز اهمیت میشود. در این حالت، با توجه به خواص مایع، تمام نیروی پَسار ناشی از سامانه دیگر متفاوت است. قطرههایی با قطرهای یکسان از مایعات مختلف، درجات متفاوتی از تغییر شکل را نشان میدهند و فاکتور عدم تقارن درجات متفاوتی از تغییر شکل یافته، با افزایش اندازه قطره، زیاد میشود. همچنین حرکت نسبی بین قطره و توده سیال بر روی انتقال جرم همرفتی بین فازها تأثیرگذار است. جنبههای هیدرودینامیکی تجمعی از قطرهها

بسیار پیچیده است. بنابراین، در ابتدا باید موارد بسیار سادهتر مانند سقوط یا صعود قطره منفرد را در سیال ساکن و نامحدود و شرایط عدم انتقال جرم بین فازها مورد بررسی قرار داد. سرعت حد کلی برای قطرههای منفرد به صورت فاصله عمودی محوری مسافت طیشده بر واحد زمان تعریف میشود که اجازه محاسبه زمانهای اقامت قطرهها را در سامانه میدهد. بر اساس تحقیقات بسیاری از محققان، قطره بعد از صعودی به میزان ۲ تا ۶ اینچ از افشانک (Nozzle) بعد از یک دوره شتاب گیری اولیه، به سرعت نهایی خود می رسد [۳].

سرعت حد عامل بسیار مهمی در طراحی ستون تجاری به شمار می آید. در بسیاری از مراجع در مورد حرکت تک قطره بدون انتقال جرم، امکان محاسبه سرعت حد با بسیاری از معادلات وجود دارد. با این حال، وجود انتقال جرم تأثیر زیادی بر سرعت حد قطره دارد که نمی توان در طراحی ستون تجاری آن را نادیده گرفت. علاوه بر این، عوامل مختلف دیگر همچون قطر قطره، دمای فاز پیوسته و عدد رینولدز فاز پراکنده متغیرهایی هستند که هر کدام به تنهایی می توانند سرعت حد را تحت تأثیر قرار دهند [۴].

وگنر و همکارانش [۵] تنییرات سرعت حد قطرههای تولوئن در آب را وگنر و همکارانش [۵] تنییرات سرعت حد قطرههای تولوئن در آب را نشان دادهاند. در قطر ۵/۵ میلیمتر، سرعت حد به مقدار بیشینه خود میرسد و از طرفی ضرایب انتقال جرم در مورد قطرههای بزرگ به سمت مقدار ثابتی میل میکند. به عبارت دیگر، در نقطه بیشینه سرعت حد، میتوان فرض کرد که ضریب انتقال جرم تقریباً ثابت است. در محدوده قطر میتوان فرض کرد که ضریب انتقال جرم تقریباً ثابت است. در محدوده قطر میشود. برای قطرههایی با قطرهای بیشتر از ۴/۵ میلیمتر ($d_p > 4.5mm$) این عامل متأثر از نحوه تغییرشکل است.

 η ليو و همكاران [۶] به بررسي تأثير اعداد بيبعد همچون نسبت چگالي، نسبت گرانروی، معکوس عدد گرانروی (Nf (Inverse viscosity number) و عدد اوتوس (Eötvös number, Eo) بر شکل و سرعتهای حدی قطرههای بالارونده در مایع پیوسته ساکن پرداختند و بر اساس مشاهدههای خود متوجه شدند که عدد فرود (Froude number, Fr) با افزایش Eo، کاهش می ابد. آن ها دریافتند که تغییر کمی در مقدار نسبت چگالی η ، درحالی که بقيه اعداد بيبعد ثابت باشند، باعث تغيير شكل و سرعت حد قطره مي شود. ژیگزیان و همکاران [۷] سامانه استخراج مایع-مایع شامل کلروفرم-اتانول و آب را مورد بررسی قرار دادند که در آن کلروفرم جزء منتقل شونده، آب، فاز پراکنده و اتانول بهعنوان حلال عمل می کرد. این سامانه دارای اختلاف چگالی بالا و هدف آن انتقال جرم از فاز پراکنده به فاز پیوسته بود. در این مطالعه، اثر اندازه قطره بر انتقال جرم بررسی شد و مشاهده شد که ضریب كلى انتقال جرم بهطور قابل توجهي با كاهش اندازه قطره افزايش مىيابد. هنگامی که قطرهها کوچک هستند، عدد Re بسیار پایین است، قطرات به صورت کره های ثابت و بدون انعطاف دیده می شوند و هیچ چرخشی در داخل قطرات رخ نمی دهد. در این شرایط، انتقال جرم به طور عمده به نفوذ مولکولی بستگی دارد و در نتیجه ضریب انتقال جرم پایین است. اما با افزایش اندازه قطره، شکل قطرهها بهصورت بیضی با محوری متقارن تبدیل می شود و جریان های چرخشی داخل قطره، انتقال جرم را تسهیل می کند. بنابراین ضریب انتقال جرم افزایش می یابد. علاوه بر این، تغییر مسیر قطرات

از صعودی عمودی به زیگزاگ بهطور واضح در طول آزمایش مشاهده شد. در بسیاری از مراجع، سرعت نهایی بررسی شده و رابطه مربوط به آن در حضور و غیاب انتقال جرم ارائه شده است. لیو و همکاران [۸] معادله تریبال را اصلاح کرده و رابطهای برای سرعت نهایی قطرات با انتقال جرم پیشنهاد کردند. آنها نتیجه گرفتند که بهدلیل انتقال جرم، سرعت حد قطرات به میزان ۷٪ کاهش مییابد. محدوده اندازه قطرات در حالت چرخش بررسیشده توسط جی و همکاران برابر با ۳m ۴–۲/۴ بود.

عزیزی و همکاران [۹۰ و ۹] سامانه شیمیایی تولوئن-اسیداستیک-آب با تنش بینسطحی بالا را مورد بررسی قرار دادند. آب اشباعشده با تولوئن بهعنوان فاز پیوسته و تولوئن اشباعشده با آب حاوی مقدار مشخصی اسیداستیک بهعنوان فاز پراکنده مورد استفاده قرار گرفت. در این پژوهش، محدوده قطر ایجادشده در آزمایشها ۲/۳–۱/۵ میلیمتر بهدست آمد. بر اساس بسیاری از معیارهای بحثشده توسط ساین و دلیری در این پژوهش برخی از قطرات در محدوده ناحیه نوسانی قرار داشتند، درحالی که مابقی قطرات در حال چرخش بودند. در اندازه بحرانی قطره، برابر با ۴/۲mm شروع نوسان مشاهده شد.

در مطالعه دیگری، باملر و همکاران [۱۱] دریافتند که طراحی دستگاهی که در آن فاز مایع درون دیگری پراکنده شده است، میتواند بسیار پیچیده باشد. طیف گستردهای از معادلات، برآوردها، مدلها و روابط باعث شده که در بعضی مواقع انتخاب مجموعهای مناسب از معادلات دشوار باشد. روابط تجربی ممکن است برآورد خوب، سریع و کمهزینهای ارائه بدهند، اما آنها برای هر سامانهای مناسب نبوده، کاربرد و محدوده صحت آنها باید به دقت بررسی شود. عملکرد روشهای عددی مانند دینامیک سیالات محاسباتی (CFD) به طور مداوم در حال ارتقاست و نتایج حاصل از آن بهتر و دقیق تر میشوند. با این حال، باید در نظر داشت که اعتبار نتایج شبیه سازی با توجه به نتایج اندازه گیری باید قابل دستیابی باشد. علاوه بر این، آنها برای سامانه تولوئن-استون-آب، برخی روابط گرافیکی و تجربی پیشنهاد دادند که محدود به قطرههای کروی است.

بررسی تأثیر انتقال جرم بر متغیرهای مهم طراحی ستون از جمله سرعت لحظهای و سرعت حد قطرات در سامانههای شیمیایی مختلف در مطالعات مختلفی به چشم میخورد [۱۲]. همچنین مطالعاتی مانند شبیهسازی سهبعدی قطرات تغییرشکلیافته بهواسطه جابهجایی مارانگونی [۱۳]، ارائه مدل CFD برای قطرات در حضور انتقال جرم [۱۱]، تأثیر نانوذرات بر انتقال جرم قطره [۱۴] و عملکرد مایع یونی بهعنوان حلال در فاز قطره در سامانه استخراج مایع-مایع [۱۵] وجود دارد. با اینحال، در زمینه بررسی سرعت حد و نسبت ابعادی قطره در حضور انتقال جرم در مقایسه با غیاب انتقال جرم در سامانه شیمیایی نرمالبوتانول-اسیدسوکسینیک-آب بنا به جستجوی نویسندگان مطالعهای صورت نگرفته است.

اسیدسوکسینیک ماده شیمیایی باارزش چهارکربنی با کاربردهای گسترده در پلیمرهای زیست تخریب پذیر، غذاها، مواد شیمیایی خوب و داروهاست و بازیافت آن به روشهای مختلف همواره مورد توجه محققان بوده است [-۱۶ ۱۹]. یکی از روشهای مناسب و مقرون به صرفه برای بازیافت آن از مواد آلی، روش استخراج مایع-مایع است. در کار آزمایشگاهی حاضر، از آب به عنوان حلال برای استخراج اسیدسوکسینیک از نرمال بوتانول به روش تک قطره

استفاده شده است. سرعت حد و تغییرشکل قطرات نرمال بوتانول بالارونده در آب مورد مطالعه قرار گرفته است. ابتدا آزمایشها در غیاب انتقال جرم و سپس با افزودن اسیدسوکسینیک در دو غلظت مختلف انجام شده است تا تأثیر انتقال جرم بر هیدرودینامیک قطرات مورد ارزیابی قرار گیرد. این سامانه شیمیایی استاندارد بهعنوان سامانه با کشش بینسطحی کم مورد تأیید فدراسیون اروپایی مهندسان شیمی است. برای دستیابی به محدوده مناسبی از قطر قطرات، از سه افشانک با اندازه دهانه متفاوت استفاده شده و سرعت بیشینه، سرعت حد و تغییرشکل قطرات مورد بررسی قرار گرفتهاند.

۲ بخش نظری ۲-۱ مواد

در این پژوهش، سامانه شیمیایی با کشش بینسطحی پایین مورد بررسی قرار گرفت. مواد شیمیایی مورد استفاده از نوع استاندارد و از تولیدات شرکت SAMCHUN کره جنوبی است. سامانه به کار گرفته شامل نرمال بوتانول اشباع از آب (فاز پراکنده) و آب اشباع از نرمال بوتانول (فاز پیوسته) است. در جدول ۱، مشخصات مواد شیمیایی مصرفی بر اساس گزارش شرکت تأمین کننده آمده است. خواص فیزیکی اندازه گیری شده فاز پیوسته و فاز پراکنده نیز در جدول ۲ ارائه شده است. برای اندازه گیری گرانروی و چگالی از دستگاه (SVM 3000) مستر معاق از دستگاه اندازه گیری کشش سطحی دو فاز آلی و آبی از دستگاه اندازه گیری کشش سطحی (IFT) به روش قطره معلق در پژوهشکده توسعه صنایع شیمیایی استفاده شد.

جدول ۱ خصوصیات شیمیایی مواد مصرفی در دمای ۲۵ درجه سانتیگراد (بر اساس گزارش شرکت تأمینکننده)

Table 1 Chemical prop	perties of the consumed	materials at 25 °C
		1

Chemical properties	Succinic	Normal	Distilled
	acid	butanol	water
Minimum degree of (%)purity	99	99	-
Density (g/cc)	1.56	0.81	1.00
Molecular mass (g/mol)	118.9	74.12	18.2
Boiling temperature (°C)	235	118	100
Solubility in water (g/L)	20	73-77	-
Dynamic viscosity (cP)	-	2.55	0.925

سته) و آلي (فاز پراکنده) در	آبی (فاز پیو،	یکی فازهای	خصوصيات فيزي	جدول ۲
اد	حه سانتہ گ	دمای ۲۵ د.	\$	

Table 2 Physical properties of aqueous	phase (continuous phase)
and organic phase (dispersed	phase) at 25 °C

and organic phase (dispersed phase) at 25°C			
Characteristics	Viscosity	Density p	Interfacial
	(mPa.s)	(g/cm^3)	tension σ
			(mN/m)
Saturated water phase	1.2115	0.9869	1.6726
Organic phase	2.9646	0.8415	1.0730

۲-۲ سامانه آزمایشگاهی

آزمایشهای انجامشده در این پژوهش، در برج استخراج مایع-مایع در مقیاس آزمایشگاهی انجام شد که نمایی از آن در شکل ۱ آورده شده است. این برج شامل قسمتهای مختلفی مانند ستون، مخزن نگهدارنده فاز پراکنده (فاز قطره)، افشانکها، پایه فلزی و تفلون کف است که اجزای مهم آن در شکل نشان داده شده است.

ستون از جنس پیرکس و با مشخصات مندرج در جدول ۳ ساخته شده است. این ستون به هنگام آزمایش از فاز پیوسته پر است. شیرهایی که برروی ستون تعبیه شده، برای نمونه گیری از فاز پراکنده هستند. برای تعبیه افشانکهای ورودی در پایین ستون، از قطعه پلیمری استفاده شده که سه حفره با دقت بسیار بالا به اندازه قطر خارجی افشانکها در آن ایجاد شده است. از آنجا که در کار با این گونه سامانهها وجود هوا به همراه جریان سیال سبب ایجاد ناپایداری در شکل گیری و اندازه قطرهها و همچنین تکرارناپذیری آزمایشها میشود، تعبیه افشانکها و تفلون کف بدین گونه شیرها نیز از نوع تفلونی تعبیه شدهاند که برای ممانعت از ورود آلایندهها به سامانه نیاز به گریس کاری ندارند. از آنجایی که لازم است فاز پراکنده مدت زمان زیادی در دستگاه باشد، به منظور جلوگیری از امکان خوردگی دیوارهها و همچنین فراهم کردن شستشوی آسان، جنس مخزن نگهداری فاز پراکنده و افشانکها، شیشهای درنظر گرفته شد.





Figure 1 Schematic of liquid-liquid extraction column and its different parts (1. Glassy column, 2. Jacket, 3. Glassy nozzles, 4. Continuous phase reservoir, 5. Pump, 6. Dispersed phase reservoir, 7. High quality camera, 8. Computer, and 9. Light system)

	جدول ۳ مشخصات ستون آزمایشگاهی
Table 3	Specification of the experimental column

Specifications	Dimensions (cm)
Height	100
Inner diameter	9
Outer diameter	10
Number of valves	4
Distance between valves	20
Column wall thickness	0.5

مخزن نگهدارنده فاز پراکنده شامل ظرف قیفی شکل از جنس شیشه و با حجم ۲۰۰ میلی لیتر است که در حداکثر ارتفاع ممکن و به فاصله ۲ متری از کف ستون قرار دارد تا بدون نیاز به پمپ، هد فشار لازم برای جریان فاز پراکنده تأمین شود. ضمناً ظرف نگهدارنده دارای دو شیر است که از یکی، بهمنظور تنظیم شدت جریان جریان فاز پراکنده و از شیر دیگر که در قسمت انتهایی افشانک قرار دارد، بهمنظور قطع و وصل کردن جریان استفاده می-شود.

جریان فاز پراکنده از قسمت انتهایی ستون وارد افشانکها می شود. از افشانکها در اندازههای مختلف دهانه ۸/۰، ۱/۵ و ۳ میلی متر استفاده شده است. در طول آزمایش تنها یکی از افشانکها جریان ساز است. افشانکها پس از قرارگیری در قطعه پلیمری ته ستون، توسط چسب آکواریوم در محل مذکور چسبانده و رفع نشتی شدند. همچنین با دقت بالا سعی شد نوک افشانکها به اندازه ۲ سانتی متر درون ستون فرو بروند.

این چهارپایه از جنس قوطی نمره ۳ آهنی و ارتفاع آن ۱۷۰ و عرض ۱۲۵سانتیمتر است. علاوه بر کف ستون که بر پایهای ثابت شده، در قسمت بالایی ستون، بازویی فلزی که محل آن نیز قابل تنظیم است، مخزن فاز پراکنده را مهار می کند. همچنین روی چهارپایه محلی به منظور قرار دادن مخزن مربوط به آبی که در جداره ستون جریان دارد، با ارتفاع مناسبی از ورودی پمپ مربوط در نظر گرفته شده است.

در صفحه سفید کف ستون از جنس پلی آمید، افشانکها تثبیت شدهاند. قطر سوراخهای ایجادشده در آن برابر ۶/۲ میلی متر است. کف ستون در مقابل خوردگی ناشی از مواد شیمیایی مختلف مقاوم است. همچنین توسط چسب، افشانکها با تفلون کاملاً آببندی شده تا از ورود یا نشت مواد به صورت کاملاً ایمن، خودداری شود. شیارهایی با حداکثر دقت ممکن روی قطعه ایجادشده تا پس از قرارگیری ستون روی آن به راحتی از نشت مواد جلوگیری شود. قطعه پلی آمیدی درون استوانه ای فلزی قرار گرفته که روی پایه ای فلزی جوش خورده است.

برای مشاهده دقیق تغییرات قطره حین جدا شدن از افشانک تا زمانی که ارتفاع مایع درون ستون را طی میکند، از دوربین سرعت بالا با کیفیت مطلوب، برای فیلمبرداری و عکسبرداری (دوربین دیجیتال ۲۰۰D) استفاده شد. نسبت ابعادی (Aspect ratio, AR) قطره از رابطه (۱) بهدست میآید:

$$AR = \frac{a}{b} \tag{1}$$

که a و b بهترتیب قطر کوچک و قطر بزرگ قطره با توجه به عکسهای گرفته شده است.

در این پژوهش، به کمک عکسبرداری از قطرهها طی عبور آنها در ستون و سپس تحلیل عکس توسط نرمافزار Adobe Photoshop CS6 13.1.2 محاسب شد. اندازه گیری قطر قطره صورت گرفت و در نهایت قطر قطره در هر آزمایش (d) به صورت میانگین قطر ساتر (Sauter mean diameter) محاسبه شد. به منظور به دست آوردن قطر در شرایط جریان پایدار، عکسبرداری متوالی از قطرهها زمانی که در فاصله دورتر از ۵ سانتی متر از نوک افشانک قرار داشتند، انجام شد.

در شکل ۲، نمونهای از عکس قطرههای مورد بررسی آمده است که بیضوی

بودن قطره در حال صعود را نشان میدهد.



شکل ۲ نمونهای از عکس قطره بالارونده در ستون آزمایشگاهی Figure 2 A rising drop in an experimental column

۲-۳ شرح آزمایش

آزمایشها بهصورت تکقطره انجام شدند. برای ثابت نگه داشتن دمای ستون حین انجام آزمایشها، ستون به صورت دوجداره ساخته شد تا بتوان دمای عملیاتی را توسط گردش جریان، ثابت نگه داشت. فاز پیوسته (آب اشباع از نرمال بوتانول) به ستون وارد شده و در طول آزمایش ساکن است. در قسمت تحتانی ستون، فاز پراکنده از طریق افشانکهایی با قطرهای داخلی متفاوت (۸/۰، ۱/۵ و ۳ میلیمتر) و فشار ناشی از ارتفاع مخزن فاز پراکنده، وارد ستون می شود. به واسطه پایین بودن چگالی فاز پراکنده نسبت به فاز پیوسته، قطرهها از خروجی افشانک به سمت بالای ستون حرکت میکنند. برای محاسبه سرعت قطرههای بالارونده، مسافت طی شده و زمان حرکت قطره (از لحظه جدا شدن از افشانک تا رسیدن به سطح فاز پیوسته) اندازه گیری شد. محاسبات مربوط از طریق نرمافزار ویرایش فیلم Adobe Premiere Pro CS4 v4.2.1 انجام شد. شدت جریان سیال فاز پراکنده از طریق محاسبه نسبت حجم ده قطره به زمان تشکیل این قطرات از هر افشانک محاسبه شد. در آزمونهای در حضور انتقال جرم از دو غلظت اسیدسوکسینیک (۲۴/۵ mM و ۲۲/۴۵ mM) در فاز پراکنده استفاده شد. در انجام آزمایشها موارد زیر مورد توجه قرار گرفته است:

۱- با توجه به اینکه وجود هر گونه آلودگی در سامانه آزمایش اثر زیادی بر نتیجه نهایی آزمونها دارد، علاوه بر استفاده از مواد شیمیایی خالص، کلیه تجهیزات و ظروف آزمایشگاهی قبل از هر آزمایش بهطور کامل شسته شده است. بنابراین آلودگیهای سطحی قابل صرفنظر کردن است.

۲- قبل از انجام آزمایش، دو فاز پراکنده و پیوسته کاملاً از یکدیگر اشباع میشوند تا از حلالیت متقابل دو فاز جلوگیری شود.

۳- برای شروع آزمایشها قبل از پرشدن ستون از فاز پیوسته، فاز پراکنده وارد افشانک میشود و تا نوک سوزن افشانک پر میشود که مسیر انتقال فاز پراکنده از مخزن مربوط تا نوک افشانکها هواگیری شده و فاز پیوسته نیز وارد افشانک نشود.

۲-۴ محاسبات

با استفاده از عکسهای قطرات و نرمافزار Photoshop قطر قطرات متعدد

میین و با استفاده از رابطه ۲ [۵] قطر متوسط ساتر محاسبه شد.
$$\sum^N \, n \, d^3$$

$$d_{32} = \frac{\sum_{i=1}^{N} n_i d_i}{\sum_{i=1}^{N} n_i d_i^2}$$
(7)

در رابطه فوق، di قطر معادل کرهای است که هم حجم با قطرههای بیضوی این آزمایشها هستند. حجم هر قطره بیضوی با تعیین قطر بزرگ و کوچک آن با عکسبرداری قابل محاسبه است.

می توان طبق رابطه ۳ عدد رینولدز مربوط به هر قطره را به این صورت بهدست آورد [۵]:

$$\operatorname{Re} = \frac{\rho_{c} * d_{32} * V_{t}}{\mu_{c}} \tag{(7)}$$

در معادله فوق، V_t سرعت حد قطرههای در حال صعود در ستون، ρ_c چگالی فاز پیوسته و μ_c گرانروی فاز پیوسته است. از رابطه ۴ نیز عدد اوتوس بهدست میآید [۱۱]:

$$Eo = \frac{g\Delta\rho d_{32}^2}{\sigma} \tag{(f)}$$

که در آن Δρ اختلاف چگالی بین فاز پراکنده و پیوسته (kg/m³) است. همچنین از رابطه ۵ برای محاسبه عدد وبر استفاده شد [۱۱].

$$We = \frac{V_t^2 \rho_c d_p}{\sigma} \tag{(\Delta)}$$

۳ نتایج و بحث

تغییرات اندازه قطرهها بر حسب شدت جریان قطرههای بالارونده در جدول ۴ آمده است. با افزایش شدت جریان قطرات در محدوده مورد مطالعه، قطر معادل قطرات بهصورت نسبی افزایش مییابد. محدوده قطر قطرات نرمال بوتانول در محدوده شدت جریان مورد آزمایش، بین ۱/۳ تا ۲/۰ میلی-متر است. همچنین در غیاب انتقال جرم قطرات درشت تری به دست می آیند که می تواند به دلیل تغییر خواص فیزیکی قطره مخصوصاً کشش بین سطحی فاز قطره باشد.

جدول ۴ تغییرات اندازه قطره با شدت جریان در سه افشانک مختلف در دمای

۲۵ درجه سانتی گراد در حضور و غیاب انتقال جرم **Table 4** Variation of drop size in the three different nozzles at 25 °C in the presence and absence of mass transfer

Nozzlo		(mm) Droj	o size range
tip size (mm)	rate Flow (mL/min)	With mass transfer	No mass transfer
0.8	0.21-0.0045	1.45-1.35	1.95-1.8
1.5	0.3-0.02	2.15-1.82	2.33-1.74
3	1.35-0.07	2.85-2.25	2.98-2.21



شکل ۳ تغییرات سرعت لحظهای در شدت جریان ثابت ۰/۰۵ میلیلیتر بر دقیقه: a) در غیاب انتقال جرم و b) در حضور انتقال جرم a



همان طور که در شکل ۳ ملاحظه می شود، پس از رهاشدن قطره از نوک افشانک سرعت لحظهای آن، دو مرحله به ترتیب شتابدار و نوسانی را طی می کند. مرحله شتابدار مرحله ناپایداری سرعت قطره محسوب می شود و در محاسبات مربوط به سرعت حد این منطقه لحاظ نمی شود. پس از طی کردن مرحله شتابدار، سرعت كاهش يافته و نوسانات سرعت آغاز مي شود و به اين ترتیب نوسانات قطره نرمال بوتانول در مقدار پایین تری که موسوم به سرعت حد است، رخ میدهد. این مقدار طبق آزمایشهای انجامشده تقریباً معادل نسبت مسافت طی شده در مرحله نوسانی، بهمدت زمان طی این مسیر (مدت زمان مرحله نوسانی) است. قابل توجه است که آزمایش ها در روزهای مختلف و با مواد شیمیایی (فاز پیوسته و پراکنده) که همواره از نو تهیه شدهاند، تكرار شده است. از مقایسه دو شكل مشخص است كه سرعت حد قطرات در حضور انتقال جرم با تأخیر بیشتری رخ داده است. همچنین انتقال جرم سوكسينيكاسيد باعث كاهش سرعت حد شده است. درواقع، بهدليل انتقال جرم در فصل مشترک پدیده جابه جایی مارانگونی رخ داده و تنش اضافهای در سطحمشترک ایجاد می شود که باعث افزایش نیروی پَسار و در نتیجه کاهش سرعت حد خواهد شد.

بهعلاوه در این شکل دیده می شود که سرعت قطره حین صعود تغییر می کند و پس از طی مرحله شتابدار، حول مقدار مشخصی نوسان خواهد کرد. بنابراین طی این نوسانها، قطره دارای چندین مقدار بیشینه سرعت خواهد بود. در این مطالعه، متوسط بیشینههای حاصل بهعنوان سرعت بیشینه (۲۸) معرفی می شود. شکل ۴ الف و ب سرعت حد (۱۲) و سرعت بیشینه قطرات را بر حسب اندازه قطرات نشان می دهد. فاصله بین نتایج سرعت حد و سرعت بیشینه، نشان دهنده میزان نوسانات قطره بوده و کمتر شدن فاصله بین مقدار سرعت بیشینه و سرعت حد به معنای کمتر شدن نوسانات سرعت

صعود قطره است [۱۱]. با توجه به شکل ۴ الف در محدوده مطالعاتی انجامشده، فاصله اندک سرعت حد و سرعت بیشینه حاکی از میزان کم نوسانات قطره است. وگنر و همکاران به این موضوع اشاره کردهاند که تغییر شکل قطره باعث تغییر در رژیم قطره میشود و تحت تأثیر این تغییر رژیم، سرعت حد ثابت میماند یا کاهش پیدا می کند [۲۰ و ۵]. از مقایسه شرایط غیاب و حضور انتقال جرم (شکل جرم، سرعت حد بهدلیل تغییر شکل قطره، روند تقریباً ثابت یا کاهشی را طی کرده است، درحالی که در شکل مربوط به حضور انتقال جرم، افزایش سرعت حد با قطر قطرات، نشاندهنده این است که تأثیر تغییر شکل قطرات بر تغییر رژیم قطره کم است.



شکل ۴ مقایسه سرعت حد و سرعت بیشینه قطره برحسب اندازه قطرات: a) در غیاب انتقال جرم و b) در حضور انتقال جرم

Figure 4 Comparison of terminal velocity and maximum velocity of drop against drop size a) in the absence of mass transfer b) in the presence of mass transfer

شکل ۵ نمودار تغییرات عدد رینولدز بر حسب عدد اوتوس است. در این شکل، روند صعودی نمودار در شرایط حضور و غیاب انتقال جرم نشان داده شده است. این نتیجه مطابق با گزارش باملر و همکاران [۱۱] برای سامانه شیمیایی خالص نرمال بوتانول-آب است و رژیم بیضوی بهدستآمده در این کار از طریق مقایسه با نتایج گزارش شده توسط آنها تأیید می شود. با توجه به محدوده بالای بهدستآمده برای عدد اوتوس، می توان نتیجه گرفت که در قطرات فاز پراکنده نیروهای گرانش قوی تر از نیروهای سطحی نقش ایفا می کنند که به دلیل کشش بین سطحی کم این سامانه شیمیایی است. حضور انتقال جرم باعث کاهش سرعت حد و در نتیجه کاهش عدد رینولدز شده است.



شكل ۵ تغييرات عدد رينولدز برحسب عدد اوتوس در حضور و غياب انتقال جرم Figure 5 Reynolds number against Eotvos number in the presence and absence of mass transfer

نمودار تغییرات عدد وبر بر حسب عدد رینولدز در شکل ۶ آمده است. با افزایش Re، عدد وبر نیز در حضور و غیاب انتقال جرم افزایش مییابد. با توجه به گزارش وگنر و همکاران [۵]، با افزایش عدد رینولدز نیروی پَسار کاهشی میشود که در نتیجه آن، سرعت حد و عدد وبر افزایش مییابند. اما شیب نمودار در شرایط حضور انتقال جرم خیلی بیشتر از غیاب انتقال جرم است. زیرا در غیاب انتقال جرم، افزایش وبر تنها تا یک محدوده مشخص رخ میدهد و نیروی پَسار با افزایش اندازه قطرات مجدداً افزایش مییابد و باعث کاهش سرعت حد و در نتیجه کاهش رشد عدد وبر خواهد شد. درحالی که در حضور انتقال جرم، بهدلیل پدیده مارانگونی ناشی از انتقال جرم و در پی آن کاهش پیوسته نیروی پَسار، در محدوده رینولدز مورد مطالعه، عدد وبر با رشد بیشتری افزایش یافته است.





شکل ۷ تغییرات نسبت ابعادی با اندازه قطرات را نشان میدهد. همانطور که ملاحظه میشود، با استفاده از بزرگترین افشانک و حین افزایش اندازه قطرات، در هر سه شکل نسبت ابعادی کاهش مییابد. کاهش نسبت ابعادی به معنای عریضتر شدن قطرات است. قطرات کوچکتر که نسبت ابعادی آنها نزدیک به ۰/۹ است، نسبتاً کروی محسوب میشوند، درحالیکه با بزرگ شدن قطرات، شکل آنها بهدلیل تغییر نیروهای وارد بر قطره، بیضوی میشود. همچنین با مقایسه این سه شکل، مشاهده میشود که محدوده نسبت ابعادی در حالت غیاب انتقال جرم از دو حالت دیگر که همراه با انتقال

جرم هستند، کمتر است. برای مثال، برای بزرگترین افشانک کمترین نسبت ابعادی حدوداً ۰/۴ و بدان معنی است که قطرات در غیاب انتقال جرم، عریض تر هستند. در شرایط انتقال جرم، تنش اضافهای ناشی از پدیده مارانگونی باعث کاهش نیروی پَسار میشود که شکل قطره را به سمت کروی پیش میبرد. با افزایش غلظت، تأثیر این پدیده بیشتر شده؛ به طوری که برای بزرگترین افشانک، کمترین نسبت ابعادی حدوداً به ۰/۶ میرسد.



شکل ۷ نسبت ابعادی با اندازه قطرات: a) در غیاب انتقال جرم، b) انتقال جرم با

غلظت ۲/۴۵ میلیمولار و c) انتقال جرم با غلظت ۲۴/۵ میلیمولار Figure 7 Aspect ratio against drop size: a) in the absence of mass transfer, b) mass transfer with initial concentration of 2.45 mM, and c) mass transfer with initial concentration of 24.5 mM

۴ نتیجه گیری

تأثیر انتقال جرم بر سرعت حد و تغییرات شکل قطره بهصورت آزمایشگاهی در ستون استخراج مایع- مایع بررسی شد. آب اشباع از نرمال بوتانول فاز پیوسته و نرمال بوتانول اشباع از آب حاوی اسیدسوکسینیک در دو غلظت مختلف فاز پراکنده را تشکیل میدهد. از سه افشانک با اندازه دهانه متفاوت استفاده شد و محدوده قطر قطرات در محدوده شدت جریان مورد آزمایش، بین ۱/۳ تا ۲/۰ میلیمتر بهدست آمد. انتقال جرم باعث کاهش اندازه قطرات و در عین حال افزایش نسبت ابعادی و کرویتر شدن قطرات میشود. درحالیکه در غیاب انتقال جرم، قطرات بهدلیل نیروهای تنش سطحی کمتر قطرات شکل بیضوی پیدا میکنند. در غیاب انتقال جرم، تغییر رژیم قطرات در محدوده اندازه مورد مطالعه ایجاد شد، اما پیش از تغییر رژیم هرچه نسبت on mass transfer using nanofluid drops in liquid-liquid extraction column, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 136, 104-106, 2022.

- 15. Saien J. and Asrami M., Comparative studies on the performance of ionic liquid and conventional solvent drops in extraction of phenol from water, *Chemical Engineering Research and Design*, 166, 259-266, 2021.
- Sprakel L., Holtkamp A.F.M., Bassa R. and Schuur B., Swing process for solvent regeneration in liquid- liquid extraction of succinic acid, *Chemical Engineering and Processing*, 143, 107600, 2019.
- 17. Amiri E., Aghababai beni A. and Pournuroz Nodeh Z., Design and manufacture of emulsion liquid membrane based on various amine extract ants for separation and extraction of succinic acid from fermentation, *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 61, 173-179, 2023.
- Zurob E., Rivas D., Olea F., Plaza A., Merlet G., Araya-López C., Romero J., Quijada-Maldonado E. and Cabezas R., Succinic acid recovery from a glycerol-based solution using phosphonium ionic liquid supported by COSMO-RS, *Fluid Phase Equilibria*, 559, 113-471, 2022.
- 19. Pratiwi A., Yokouom T., Matsumoto M. and Kondo K., Extraction of succinic acid by aqueous two –phase system using alcohol/ salts and ionic liquid /salts, *Separation and Purification Technology*, 155, 127-132, 2015.
- 20. Fereydani A. and Azizi Z., Experimental study of extraction fraction and mass transfer coefficient in a microchannel using butyl acetate/acetic acid/water chemical system, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 133, 945-950, 2018.

ابعادی بیشتر باشد، سرعت حد نیز بیشتر است؛ بهطوری که در ۸/ AR= ۸/ که بیشینه نسبت ابعادی است، سرعت حد بیشینه معادل حدوداً ۱۰۰ میلی متر بر ثانیه به دست می آید. در حضور انتقال جرم، سرعت حد با تأخیر بیشتری به دست می آید و نسبت به شرایط غیاب انتقال جرم مقادیر کمتری دارد. انتقال جرم نقش مؤثری بر رژیم قطرات دارد؛ به طوری که در حضور انتقال جرم، قطرات درشت حتی با وجود تغییر شکل، دچار تغییر رژیم نشدند. با افزایش غلظت اسید سوکسینیک، تأثیر پدیده مارانگونی بیشتر و باعث افزایش نسبت ابعادی (کروی تر شدن قطره) شد؛ به طوری که برای بزر گترین افزایش نسبت ابعادی به ۶/۰ می رسد.

مراجع

- 1. Seader J.D. and Henley Ernest J., Wiley J., Separation Process Principles, John Wiley & Sons, Inc., New York (1998) 848.
- Wegener M., Paul N. and Kraume M., Fluid Dynamics and Mass Transfer at Single Droplets in Liquid/Liquid Systems, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 71, 475-495, 2014.
- 3. Saien J. and Daliri S., Improving Performance of Liquid– Liquid Extraction with Temperature for Mass Transfer Resistance in Both Phases, *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 45, 808-814, 2014.
- 4. Yu B., Zou M. and Feng Y., Permeability of Fractal Porous Media by Monte Carlo Simulations, *Journal of Heat and Mass Transfer*, 48, 2787-2794, 2005.
- Wegener M., Kraume M. and Paschedag A.R., Terminal and Transient Drop Rise Velocity of Single Toluene Droplets in Water, *AIChE Journal*, 56, 2–10, 2010.
- Liu L., Tang H. and Quan S., Shapes and terminal velocities of a drop rising in stagnant liquids, *Computers & Fluids*, 81, 17–25, 2013.
- Zhixian H., Changshen Y., Ling L., Xiaowu Z. and Ting Q., Measurement and correlation of the mass transfer coefficient for a liquid –liquid system with high density difference, *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 33, 897-906, 2016.
- Liu L., Tang H., Quan S., Jie Y., Weiyang F. and Li H.Z., Effect of packing on drop swarms extraction of high viscosity solvents, *Hydrometallurgy*, 78, 30–33, 2005.
- Azizi Z. and Rezaeimanesh M., Packing effect on mass transfer and hydrodynamics of rising toluene drops in stagnant, *Chemical Engineering Research and Design*, 115, 44–52, 2016.
- Azizi Z., Rahbar A. and Bahmanyar H., Investigation of packing effect on mass transfer coefficient in a single drop liquid extraction column, Iranian Journal of Chemical Engineering, 7, 3-11, 2010.
- Bäumler K., Wegener M., Paschedag A.R. and Bänsch E., Drop rise velocities and fluid dynamic behavior in standard test systems for liquid/liquid extraction experimental and numerical investigations, *Chemical Engineering Science*, 66, 426-439, 2011.
- Panahinia F., Ghannadi M. Safdari J., Amani P. and Mallah M., Experimental investigation concerning the effect of mass transfer direction on mean drop size and holdup in a horizontal pulsed plate extraction column, *RSC Adv*, 7, 8908-8921, 2017.
- Engberg R., Wegener M. and Kenig Y., The impact of Marangoni convection on fluid dynamics and mass transfer at deformable single rising droplets –A numerical study, *Chemical Engineering Science*, 116, 208-222, 2014.
- 14. Dhindsa A., Sobti A., Wanchoo R.K. and Pal Toor A., Study