Raport stiintific

privind implementarea proiectului PN-II-ID-PCE-2011-3-0762, nr. 175/25.10.2011 **"Reducerea emisiilor de nanoparticule prin optimizarea proceselor de filtrare a gazelor reziduale de ardere"** in perioada octombrie2011 – decembrie 2013

Obiectivele generale ale proiectului:

- Modelarea matematica si simularea numerica a comportamentul suspensiilor de particule nanometrice intr-un mediu fluid compresibil gaze de ardere sub actiunea campului electric, in scopul captarii lor.
- Modelarea experimentala si optimizarea proceselor de filtrare, in scopul limitarii emisiei de nanoparticule din gazele de ardere evacuate.
- Realizarea unui studiu de prefezabilitate, atat din perspectiva economica, cat si prin prisma unei interventii prin politici publice, pentru estimarea intentiei de investitie in filtre de nanoparticule.

Activitati efectuate s-au axat pe realizarea obiectivelor corespunzatoare etapei (conform planului de lucru din propunerea de proiect).

Etapa I (octombrie – decembrie 2011) Obiectiv principal:

1. Crearea unei baze de date, care sa cuprinda principalele rezultate teoretice si experimentale in domeniu, cuprinzand activitati de documentare si clasificare a materialului bibliografic dupa domenii specifice: teoretic, computational, experimental, analiza si caracterizare nanoparticule.

S-a realizat o baza de date ce cuprinde un numar de 60 reviste continand 124 articole de specialitate incepand cu anul 1998, preluate din baze de date internationale (American Institute of Physics, Institute of Physics, ScienceDirect, SpringerLink, Taylor & Francis, Web of Science) puse la dispozitie prin amabilitatea UEFISCDI, in cadrul proiectului ANELIS si Biblioteca Centrala Universitara a Universitatii de Vest Timisoara.

Activitati efectuate:

- Studiu bibliografic

1. Situatia actuala privind domeniul vizat de proiect

Particulele nanometrice reprezinta un subiect de interes deosebit in ultimele doua decenii de cercetare stiintifica. Pe plan mondial se evidentiaza tot mai stringent problema efectului daunator al nanopulberilor si al nanosuspensiilor lichide (< 100 nm). Acestea, odata inhalate, ajung foarte rapid in sange si nu pot fi eliminate, deoarece celulele macrofage nu le pot identifica. Cercetari recente [1-4] au aratat ca daca un material brut nu este periculos, acesta poate deveni toxic daca este sub forma de nanoparticule.

La nivel european, in mai 2008, a fost adoptata Directiva privind calitatea aerului inconjurator si un aer mai curat pentru Europa (Directiva 2008/50/CE). Aceasta stabileste noi obiective privind calitatea aerului pentru PM_{2.5} (particule fine) si vizeaza prevenirea efectelor daunatoare asupra mediului inconjurator si asupra sanatatii. Directiva 2010/75/EU a Parlamentului European si a Consiliului Europei privind emisiile industriale (emisiile provenite din surse stationare si emisiile cauzate de productia de electricitate) a fost adoptata la 24 noiembrie 2010, a intrat in vigoare la 6 ianuarie 2011 si trebuie sa fie transpusa in legislatia nationala de catre statele membre pana la 7 ianuarie 2013. Programul "Aer curat pentru Europa" si initiativa "Inspire" vizeaza reducerea acestui tip de poluare pana in anul 2020. Romania a transpus o mare parte a legislatiei comunitare in domeniul protectiei mediului. Prin legislatia adoptata (HG 541/2003; Ordinul MAPM 462/1993) emisiile de pulberi sunt limitate la 30-50 mg/m³ pentru instalatiile mari de ardere si la 50 mg/m³ pentru alte sectoare industriale, dar in ceea ce priveste procesul de filtrare a nanoparticulelor nu exista inca solutii eficiente. Nanoparticulele inhalate pot produce radicali liberi, pot deteriora ADN-ul si altera genele, ceea ce conduce la cresterea probabilitatii producerii cancerului, precum si a incidentei fenomenelor mutagene si teratogene. Principalii responsabili in ceea ce priveste poluarea cu nanoparticule sunt emisiile industriale (instalatiile de ardere a deseurilor, industria metalurgica, fabrici de ciment, termocentrale, etc.), la care se adauga cele ale motoarelor cu ardere interna. Toti compusii chimici continuti in gazele rezultate din procesele de ardere au efect nociv asupra atmosferei, biodiversitatii si organismului uman. Raspandirea lor atat sub forma de nanoparticule, cat si adsorbite pe carbonul fin divizat determina mentinerea indelungata sub forma de suspensii foarte fine in atmosfera si, totodata, modul cel mai direct de asimilare pulmonara, sanguina si celulara a acestor noxe. In general, sursele de

emisii poluante sunt echipate cu diferite filtre, care insa capteaza doar particulele micronice, pe cand cele nanometrice scapa aproape in totalitate in aer. Desi masa de particule nanometrice este mica comparativ cu cea a particulelor micronice, din punct de vedere numeric ele depasesc cu cel putin patru ordine de marime pe toate celalalte. Metodele clasice utilizate pentru manipularea (retinerea, separarea) particulelor micrometrice au fost testate in ultimii ani si pentru particule nanometrice, majoritatea insa fara prea mult succes [3]. In instalatiile clasice de captare doar o mica parte dintre nanoparticulele emise sunt colectate, si aceasta doar atunci cand se ataseaza de particule mai mari. Dispozitivele mecanice (cicloane, filtre cu saci, camere de sedimentare) nu sunt eficiente datorita greutatii mici a nanoparticulelor, iar metodele chimice sunt lente si pot modifica compozitia nanoparticulelor in decursul procesarii. Filtrele clasice Corona au eficienta de retinere ridicata a particulelor micrometrice (93-99%), dar cele nanometrice scapa aproape in totalitate in aer [2,4]. Cele mai promitatoare metode de manipulare a nanoparticulelor sunt cele bazate pe utilizarea dielectroforezei (DEP) [4,5]. Aceasta reprezinta fenomenul de miscare a materiei polarizabile plasate in camp electric neuniform, nefiind necesara o incarcare electrica prealabila a acesteia (Figura 1). In campuri electrice neuniforme particulele dielectrice se deplaseaza ca urmare a



interactiunii dintre momentul dipolar indus in particula si campul electric aplicat, rezultand o forta translationala numita forta dielectroforetica (\mathbf{F}_{DEP}). Forta dielectroforetica depinde de dimensiunea particulelor, conductivitate, constanta dielectrica a acestora si a mediului precum si de gradientul patratului intensitatii campului electric aplicat [4-8].

Figura 1: Particula neutra plasata in camp electric neuniform.

Forta dielectroforetica poate fi scrisa sub forma [4-7]: $\mathbf{F}_{DEP} = (\mathbf{m}(\omega) \cdot \nabla) \mathbf{E}$, unde \mathbf{E} este intensitatea campului electric, $\mathbf{m}(\omega) = 4\pi a^3 \varepsilon_m k(\omega) \mathbf{E}$ reprezinta momentul dipolar indus intr-o particula sferica omogena, ω pulsatia campului, a raza particulei, iar $k(\omega)$ factorul Clausius–Mossotti.

In medii fluide, traiectoria unei particule este determinata, alaturi de forta dielectroforetica, de forte de



natura hidrodinamica (vascozitatea), greutate, arhimedica, termica, browniana si forte de natura cuantica, datorate dimensiunilor reduse ale particulelor. Toate aceste forte dau o rezultanta dependenta de proprietatile fizice ale particulei, mediului fluid si ale campului aplicat (frecventa, intensitate), ce determina devierea si in final retinerea in zone prestabilite, avand ca rezultat reducerea concentratiei de nanoparticule sau chiar eliminarea lor din mediul fluid:

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}_{\text{DEP}} + \mathbf{F}_{\text{drag}} + \mathbf{F}_{\text{buyoancy}} + \mathbf{F}_{\text{thermal}} + \mathbf{F}_{\text{brownian}}$$
[7].

Figura 2: Forte exercitate asupra unei particule aflate intr-un mediu fluid, sub actiunea dielectroforezei.

1.1 Modelarea matematica a dielectroforezei

Pentru determinarea campului electric si a fortelor dielectroforetice se porneste de la calculul potentialului electric pentru o geometrie data si considerand conditiile pe frontiera corespunzatoare retelei de electrozi. Folosind notatia fazoriala, un potential oscilant de frecventa ω se scrie sub forma $V(\mathbf{x},t) = \operatorname{Re}\{\tilde{V}(\mathbf{x})e^{j\omega t}\}$, unde $j = (-1)^{1/2}$, vectorul \mathbf{x} descrie coordonatele spatiale, Re{} indica partea reala si simbolul "~" indica fazorul $\tilde{V} = V_R + jV_I$, cu V_R si V_I partea reala si respectiv partea imaginara a potentialului electric. Cele doua componente ale potentialului satisfac ecuatia lui Laplace: $\nabla^2 V_R = 0$ si respectiv $\nabla^2 V_I = 0$. Densitatea volumica de forta mediata in timp care actioneaza asupra dipolului particulei este $\langle \mathbf{F} \rangle = 3/2 \varepsilon_m \operatorname{Re}\{\tilde{k}(\omega) \tilde{\mathbf{E}} \cdot \nabla \tilde{\mathbf{E}}^*\}$ [8,9], unde $\tilde{\mathbf{E}} = -\nabla \tilde{V} = -\nabla (V_R + jV_I)$ este fazorul campului electric, "*" indica conjugata complexa, factorul Clausius–Mossotti este $\tilde{k}(\omega) = (\tilde{\varepsilon}_p - \tilde{\varepsilon}_m)/(\tilde{\varepsilon}_p + 2\tilde{\varepsilon}_m)$, $\tilde{\varepsilon}_p$ si $\tilde{\varepsilon}_m$ fiind permitivitatea absoluta a particulei si respectiv a mediului, marimi care depind de proprietatile dielectrice ale particulei si mediului precum si de geometria particulei.

Pentru a se evita calculele cu valori numerice ce se intind pe o plaja foarte extinsa, in practica se utilizeaza o forma adimensionala a ecuatiilor. In cazul nostru, folosind o valoare a potentialului electric scalata la amplitudinea semnalului aplicat V_0 si raportand distantele la o distanta de referinta d (de exemplu distanta dintre mijloacele electrozilor) se obtine expresia adimensionalizata a densitatii de forta:

$$\langle \mathbf{F} \rangle = \langle \mathbf{F}_{DEP} \rangle + \langle \mathbf{F}_{twDEP} \rangle = 3/4 \,\varepsilon_m \tilde{k}_r \left(V_0^2 / d^3 \right) \nabla' \left(\left| \nabla' V_R' \right|^2 + \left| \nabla' V_I' \right|^2 \right) - 3/2 \,\varepsilon_m \tilde{k}_i \left(V_0^2 / d^3 \right) \left(\nabla' \times \left(\nabla' V_R' \times \nabla' V_I' \right) \right) \right)$$

unde s-a notat $V'_R = V_R/V_0$, $V'_I = V_P/V_0$ si **x'=x**/*d*, iar indicii inferiori *r* si *i* evidentiaza partea reala si respectiv imaginara a factorului Clausius-Mossotti [8-10]. Primul termen se numeste forta DEP, depinde de neuniformitatea campului creat de electrozi si sugereaza faptul ca forta dielectroforetica poate fi folosita la separarea particulelor datorita polarizarii diferite a acestora in functie de permitivitatea mediului si a particulei (semnul lui $\tilde{k}_r(\omega)$ depinde de permitivitati, conductivitati si frecventa semnalului aplicat pe electrozi). Cel de al doilea termen este numit forta twDEP (traveling wave dielectrophoresis) si este nenul in cazul in care campul electric prezinta o variatie spatiala a fazei. Astfel de situatii se intalnesc doar in cazul campurilor electrice alternative. In anumite geometrii potrivit alese forta twDEP poate fi folosita si ea pentru separarea particulelor cu proprietati/dimensiuni diferite [4-8]

O determinare corecta a fortelor dielectroforetice se face prin rezolvarea numerica a ecuatiilor Laplace pentru potentialele electrice, pe o geometrie realista si cu conditii pe frontiera potrivite. Datorita periodicitatii sistemului de electrozi (Figura 3) - unde cu *w* s-a notat latimea electrozilor, *d* distanta dintre doi electrozi, *h* inaltimea camerei de separare (domeniului considerat) - calculul fortei dielectroforetice se poate efectua pe o singura "celula unitate". Un exemplu de geometrie considerata in rezolvarea numerica a problemei, precum si conditiile pe frontiera specifice sunt prezentate in Figura 4 [8-10].



Figura 3: Camera de separare DEP. Sistem de electrozi pe suport de sticla.



Figura 4: Domeniul de calcul si conditiile pe frontiera pentru potentialele electrice

Se pot utiliza si alte tipuri de conditii pe frontiera, mai comode din punct de vedere

numeric dar mai putin realiste, precum si variante de abordare analitica a problemei [4,8]. Fortele dielectroforetice depind de toate coordonatele spatiale, si prezinta o variatie puternica in vecinatatea marginilor electrozilor, unde gradientii campului sunt maximi.

1.2 Situatia actuala privind realizarile experimentale si aplicatiile din domeniu

Dielectroforeza prezinta o serie de aplicatii in manipularea si analiza micro- si nano-particulelor. Metoda fundamentala de manipulare consta in captarea unor particule in zonele cu intensitate maxima a campului electric local. Astfel de metode au fost folosite cu succes pentru captarea microparticulelor si celulelor vii [5,6]. O importanta mai mare din punct de vedere al aplicatiilor o au metodele de separare dielectroforetice. In acest sistem, componentele unei suspensii duale sunt separate in zonele de minim, respectiv maxim, ale campului electric. Metoda de separare a fost folosita cu succes pentru a separa microparticule, particule minerale, bacterii de celule animale, celule rosii de celule cancerigene sau celule vii de celule moarte. Dezavantajul primar in aceasta configuratie consta insa in necesitatea de a avea o diferenta relativa de peste 50% intre frecventele de excitare a particulelor. Aceasta problema a fost remediata in parte prin folosirea tehnicii "travelling-wave DEP" (twDEP), folosita pentru captarea si separarea virusilor sau a celulelor cancerigene. Metode de tip "fractionarea campului de curgere" (DEP-FFF) au fost folosite pentru a pozitiona particulele intr-un fluid in curgere folosind dielectroforeza. DEP-FFF este important deoarece permite manipularea particulelor cu dimensiuni sub-micronice, pentru care miscarea browniana are un impact asupra pozitiei. DEP-FFF este folosit in sisteme care contin, printre altele, microsfere de latex, celule stematice sau celule rosii [11]. O alta metoda care poate fi de asemenea folosita la focalizare



Figura 5: Configuratii standard ale dispozitivelor DEP: a) electrozi paraleli, b) micro-varfuri, c) perechi de microvarfuri, d) electrozi polinomiali.



Figura 6: Schema a doua dispozitive DEP.

unui jet de particule sau celule intr-un fluid in miscare este deflectia prin dielectroforeza. Un factor important in stabilirea posibilelor aplicatii ale dielectroforezei o constituie geometria dispozitivelor utilizate [6,7]. In practica sunt folosite o serie de modele standard, ilustrate in Figura 5. Alegerea dispozitivului precum si dimensiunile acestuia sunt determinate in primul rand distributia campului electric, respectiv proprietatile de particulelor care urmeaza a fi analizate. Din punct de vedere al aplicatiilor practice, domeniul principal de utilizare a DEP este cel al micro-biologiei [12]. Dielectroforeza a fost folosita pentru manipularea lanturilor de ADN, a proteinelor si a virusilor. Un lant de ADN de 16.5 µm a fost imobilizat folosind un set de electrozi de 15 µm. Intr-un experiment similar, DEP a fost folosit pentru captarea unui lant ADN folosind o configuratie de 4 electrozi dimensiuni intre 5 si 50 µm. Captarea si analiza ADN-ului au fost realizate si in dispozitive cu dimensiuni de 2 µm, unde DEP a fost folosita pentru a anula impactul fortele browniene. Unul dintre primele exemple de manipulare dielectroforetica a proteinelor se refera la moleculele de avidina. Dispozitivul folosit in acest caz constand intr-o configuratie de electrozi paraleli cu dimensiuni si separatie de 2 µm. Rezultate similare au fost raportate si in cazul manipularii si separarii virusilor, dimensiunea configuratiilor folosite ramand tipic in domeniul a 4 µm. In domeniul, nanoscopic, au fost raportate o serie de succese in captarea unor celule bacteriene (dimensiuni tipice in jur de 800 nm) folosind o configuratie DEP circulara cu dimensiuni intre 230 si 780 µm (Figura 6) [6]. Datorita dimensiunilor compacte a dispozitivelor DEP, acestea au devenit un candidat important pentru dezvoltarea tehnologiei "lab-on-a-chip", dispozitive micro- si nano-scopice care integreaza instrumentatia necesara efectuarii unor serii de analize [13]. Un exemplu practic al unui astfel de dispozitiv este ilustrat in Figura 7. Acest tip de configuratie este utilizat in combinarea si transportarea celulelor sau a separarea. medicamentelor. Dimensiunile tipice ale dispozitivelor sunt de ordinul milimetrilor dar pot ajunge si la dimensiuni de ordinul centrimetrilor. Astfel, o serie de modele au fost propuse pentru manipularea particulelor conductoare si dielectrice, separarea particulelor din suspensii sau manipularea particulelor aflate intrun fluid in curgere. Odata cu evolutia gradului de miniaturizare, dispozitive integrate DEP au fost folosite pentru a controla

particule cu dimensiuni tipice de 93 nm (Figura 8).

Un alt set de aplicatii al electroforezei are loc in cadrul nanotehnologiei, in special in asamblarea unor noi dispozitive de dimensiuni nanoscopice. In acest context, DEP a fost folosit cu succes pentru manipularea si controlul nano-firelor metalice sau a nano-tuburilor de carbon [11-13].



Figura 7: Schema unui dispozitiv lab-on-a-chip.



Figura 8: Colectare de nanoparticule cu DEP.

2. Etape ulterioare, perspective

Deoarece la ora actuala nu exista un model unitar care sa descrie satisfacator comportamentul suspensiilor nanometrice in medii fluide sub actiunea dielectroforezei, proiectul isi propune sa realizeze in urmatoarea etapa un model matematic care sa considere toate fortele ce guverneaza electrohidrodinamica nanoparticulelor (dielectroforetica, vascozitate, browniene, forte de natura termica si cuantica), in functie de proprietatile lor fizice, ale mediului fluid si de campul electric aplicat. Modelul va fi implementat apoi numeric in scopul obtinerii know-how-ului de realizare a unor dispozitive destinate manipularii nanoparticulelor (retinere, separare) pe clase de dimensiuni si/sau proprietati fizice diferite.

Concluzii

Studiul bibliografic efectuat precum si analiza solutiilor tehnice de implementare existente la ora actuala au constituit setul de baza al cerintelor stiintifice si tehnice indeplinite de echipa proiectului in etapele urmatoare, unde au fost verificate ipotezele formulate, in scopul indeplinirii obiectivelor proiectului.

Bibliografie:

- [1] Office for Official Publications of the European Communities: *Ambient air pollution by As, Cd and Ni compounds*, Position Paper, Luxembourg (2001), ISBN 92-894-2054-5.
- [2] D. Rickerby, M. Morrison: *Report from the Workshop on Nanotechnologies for Environmental Remediation*, JRC Ispra 16-17, April (2007).
- [3] A.D. Maynard, E.D. Kuempel: *Airborne nanostructured particles and occupational health*, J. of Nanoparticle Research **7** (2005).
- [4] M. Lungu, A. Neculae, M. Bunoiu: *Some considerations on the dielectrophoretic manipulation of nanoparticles in fluid media*, J. of Optoelectronics and Advanced Materials **12** (2011).
- [5] R. Pethig: *Review Article-Dielectrophoresis: Status of the theory, technology, and applications,* Biomicrofluidics **4**, (2010).
- [6] C. Zhang, K. Khoshmanesh, A. Mitchell, K. Kalantar-Zadeh: *Dielectrophoresis for manipulation of micro/nano particles in microfluidic systems*, Anal Bioanal Chem 396, (2010).
- [7] A. Castellanos, A. Ramos, N. Gonzales, N. Green, H. Morgan: *Electrohydrodynamics and dielectrophoresis in microsystems: scaling laws*, J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 36, (2003).
- [8] S. Shklyaev, A.V. Straube, *Particle entrapment in a fluid suspension as a feedback effect*, New Journal of Physics **10**, (2008).
- [9] N.G. Green, A. Ramos, H. Morgan: *Numerical solution of the dielectrophoretic and travelling wave forces for interdigitated electrode arrays using the finite element method*, J. of Electrostatics 56, (2002).
- [10] Yuan Lin: *Numerical modeling of dielectrophoresis,* Technical Reports from Royal Institute of Technology KTH Mechanics SE-100 44 Stockholm, Sweden, (2006).
- [11] S.J. Dickerson: *Design of 3D Integrated Circuits for Manipulating and Sensing Biological Nanoparticles*, PhD Thesis, University of Pittsburgh, (2007).

[12] B. H. Lapizco-Encinas, M. Rito-Palomares: *Dielectrophoresis for the manipulation of nanobioparticles*, Electrophoresis **28** (2007).

[13] www.nanoforum.org

Etapa II (ianuarie – decembrie 2012)

Obiective principale:

2. Modelarea matematica si simularea numerica a comportamentului suspensiilor de particule nanometrice intr-un mediu fluid sub actiunea campului electric neuniform (dielectroforezei), in scopul retinerii/manipularii acestora si studiul parametric al sistemului.

2.1 Construirea modelului matematic pentru descrierea sistemului studiat.

S-a construit modelul matematic pentru descrierea comportamentului unei suspensii de nanoparticule intrun mediu fluid supuse actiunii unui camp electric neuniform (dielectroforezei), vascozitatii, greutatii. Activitati efectuate:

- Aflarea ecuatiilor care guverneaza dinamica sistemului, a domeniului de calcul si a conditiilor initiale si pe frontiera asociate acestuia:

Conform consideratiilor generale prezentate in raportul etapei 2011, forta mediata in timp care actioneaza asupra unei particule dielectrice aflate in camp electric neuniform este formata din doua contributii independente (indicii *R* si *I* indica partile reala si respectiv imaginara ale marimiii fizice considerate):

$$\left\langle \mathbf{F} \right\rangle = \frac{3}{4} \varepsilon_m K_R \nabla \left| \tilde{\mathbf{E}} \right|^2 - \frac{3}{2} \varepsilon_m k_I \nabla \times (\mathbf{E}_R \times \mathbf{E}_I)$$
(1)

Primul termen se refera la efectul amplitudinii neuniforme spatiale a campului electric. Al doilea termen al ecuatiei (1) este nenul in cazul in care campul electric are o faza dependenta spatial, iar fenomenul corespunzator acestei situatii se numeste *traveling wave dielectrophoresis* (*tw*DEP). Factorul *Clausius–Mossotti* (CM), este dat de relatia:

$$\tilde{K}(\omega) = \frac{\tilde{\varepsilon}_p - \tilde{\varepsilon}_m}{\tilde{\varepsilon}_p + 2\tilde{\varepsilon}_m}$$
(2)

unde $\tilde{\varepsilon}_p$ si $\tilde{\varepsilon}_m$ reprezinta permitivitatea absoluta a particulei si respectiv a mediului, marimi care depind de proprietatile dielectrice ale particulei si mediului precum si de geometria particulei.

In ecuatia (2), $\tilde{\varepsilon} = \varepsilon' - i\varepsilon''$ este permitivitatea dielectrica complexa iar ε' si ε'' reprezinta componenta reala respectiv componenta imaginara a permitivitatii dielectrice complexe si pot fi scrise sub forma Debye:

$$\varepsilon' = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon(0) - \varepsilon_{\infty}}{1 + \omega^2 \tau^2}$$
(3)

$$\varepsilon'' = \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0} + \frac{[\varepsilon(0) - \varepsilon_\infty]\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2}$$
(4)

unde σ este conductivitatea electrica a particulei sau a mediului si τ este timpul de relaxare. Din teoria Debye se stie ca timpul de relaxare este corelat cu frecventa f_{max} , la care $\varepsilon^{"}$ are un maxim dat de relatia $2\pi f_{max}\tau = 1$. Introducand In ecuatia (2) forma complexa a permitivitatii dielectrice a particulei, $\tilde{\varepsilon}_{p} = \varepsilon'_{p} - i\varepsilon''_{p}$, respectiv a mediului $\tilde{\varepsilon}_{m} = \varepsilon'_{m} - i\varepsilon''_{m}$, vom putea determina componenta reala $\operatorname{Re}\left[\tilde{K}(\omega)\right]$ si imaginara $\operatorname{Im}\left[\tilde{K}(\omega)\right]$ a factorului Clausius–Mossotti. Rezulta urmatoarele relatii:

$$\operatorname{Re}\left[\tilde{K}(\omega)\right] = \frac{\varepsilon_{p}^{\prime 2} + \varepsilon_{p}^{\prime 2} + \varepsilon_{p}^{\prime}\varepsilon_{m}^{\prime} - 2\varepsilon_{m}^{\prime 2} + \varepsilon_{m}^{\prime\prime}\left(\varepsilon_{p}^{\prime\prime} - 2\varepsilon_{m}^{\prime\prime}\right)}{\varepsilon_{p}^{\prime 2} + \varepsilon_{p}^{\prime\prime^{2}} + 4\varepsilon_{p}^{\prime}\varepsilon_{m}^{\prime} + 4\varepsilon_{m}^{\prime\prime^{2}} + 4\varepsilon_{m}^{\prime\prime}\left(\varepsilon_{p}^{\prime\prime} + \varepsilon_{m}^{\prime\prime}\right)}$$
(5)

$$\operatorname{Im}\left[\tilde{K}(\boldsymbol{\omega})\right] = \frac{3\varepsilon_{p}^{"}\varepsilon_{m}^{'} - 3\varepsilon_{p}^{'}\varepsilon_{m}^{"}}{\varepsilon_{p}^{'2} + \varepsilon_{p}^{"2} + 4\varepsilon_{p}^{'}\varepsilon_{m}^{'} + 4\varepsilon_{m}^{'2} + 4\varepsilon_{m}^{"}\left(\varepsilon_{p}^{"} + \varepsilon_{m}^{"}\right)}$$
(6)

Din relatiile (5) si (6) putem observa ca componentele reala si imaginara a factorului Clausius–Mossotti depind de proprietatiile dielectrice ale particulei respectiv mediului precum si de frecventa campului aplicat. Dependenta de frecventa a acestui factor determina dependenta frecventei fortei dielectroforetice care este unica pentru un anumit timp de particula. Prin urmare putem folosi dielectroforeza ca un mijloc eficient de separare a particulelor In functie de proprietatiile dielectrice si dimensiune. Intr-un mediu dielectric directia fortei dielectroforetice este influentata de polarizabilitatea particulelor care depind de permitivitatea particulei si de mediu. Atunci cand $\operatorname{Re}[\tilde{K}(\omega)] > 0$ miscarea particulelor este orientata spre regiunile cu camp mai puternic, fenomen cunoscut sub numele de *dielectroforeza pozitiva* (pDEP). Cand

 $\operatorname{Re}[\tilde{K}(\omega)] < 0$, particulele se deplaseaza spre regiunea cu camp mai scazut , fenomen cunoscut sub numele de *dielectroforeza negativa* (nDEP).

Cele doua componente ale potentialului $\tilde{V} = V_R + jV_I$ satisfac ecuatia lui Laplace:

$$\nabla^2 V_R = 0, \ \nabla^2 V_I = 0. \tag{7}$$

Dupa introducerea expresiilor corespunzatoare pentru fazorul tensiunii, cele doua componente ale fortei (1) se pot scrie [1,4]:

$$\left\langle \mathbf{F}_{DEP} \right\rangle = \frac{3}{4} \varepsilon_m K_R \nabla \left(\left| \nabla V_R \right|^2 + \left| \nabla V_I \right|^2 \right), \text{ respectiv } \left\langle \mathbf{F}_{twDEP} \right\rangle = -\frac{3}{2} \varepsilon_m K_I \left(\nabla \times \left(\nabla V_R \times \nabla V_I \right) \right)$$
(8)

Partea reala a factorului Clausius-Mossotti [7] $K_R(\omega)$ da forta dielectroforetica pe directia verticala, in timp ce partea imaginara $K_I(\omega)$ da forta twDEP pe directia orizontala.

In figura 9 se prezinta doua structuri tipice de dispozitive folosite in separarea dielectroforetica. Prima corespunde separarii prin intermediul fortei DEP, iar a doua separarii prin cel al fortei twDEP.



Figura 9: Reprezentarea schematica a dispozitivelor experimentale pentru separare folosind: a) forta DEP, b) forta twDEP.

Conditiile la frontiera domeniului de calcul sunt prezentate in figura 10. Din motive de simetrie si periodicitate, am prezentat o singura celula elementara, intr-o sectiune longitudinala prin dispozitiv si conditiile la frontiera pentru potentialul real. Conditiile la frontiera pentru potentialul imaginar sunt similare. In literatura de specialitate este neglijata grosimea fizica a electrozilor (situatie prezentata in



raportul fazei 2011), dar in modelul nostru matematic am folosit o descriere mai realista a problemei, care tine cont de forma si grosimea electrozilor [3,4,12].

Figura 10: Reprezentari ale domeniului de calcul si ale conditiilor la frontiera asociate tinand cont de geometria electrozilor.

Comportamentul macroscopic al unei suspensii de particule sferice aflate intr-un fluid dens si vascos poate fi modelat avand in vedere echilibrul mecanic dintre o forta externa **F** si forta de rezistenta vascoasa de tip Stokes [1,4]:

$$\mathbf{v} = \mathbf{u} + \frac{2a^2}{9\eta}\mathbf{F}$$
, unde: $\nabla \mathbf{u} = 0$; $\frac{\partial \varphi}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0$, unde: $\frac{\partial \varphi}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0$ (9)

u si **v** sunt vitezele fluidului respectiv particulei, a - raza particulei, η - vascozitatea fluidului, t - timpul, **j** - fluxul de particule, D - coeficientul de difuzie al particulei si **F** reprezinta campul dielectroforetic extern.

O reprezentare a domeniului de calcul pentru determinarea campului de concentratie este data in figura 11. Daca se neglijeaza grosimea electrozilor, profilul de curgere a fluidului poate fi considerat ca fiind de tip Poiseuille [4,5,12], dar in situatia in care se ia in considerare si geometria electrozilor, campul de viteze se calculeaza numeric prin rezolvarea ecuatiei Navier-Stokes impunand conditia de aderenta a



fluidului real la pereti si electrozi [3-5].

Figura 11: Reprezentarea schematica a domeniului macroscopic pentru calculul campului de concentratie. Curgerea fluidului este de tip Poiseuille.

Notand cu V_0 amplitudinea semnalului aplicat si cu d o distanta caracteristica dispozitivului, expresiile adimensionalizate ale componentelor fortei in raport cu potentialele electrice adimensionale $V'_R = V_R/V_0$ si $V'_I = V_I/V_0$ si distanta $\mathbf{x}' = \mathbf{x}/d$, devin:

$$\left\langle \mathbf{F}_{DEP} \right\rangle = F_{0DEP} \nabla' \left(\left| \nabla' V_{R}' \right|^{2} + \left| \nabla' V_{I}' \right|^{2} \right), \text{ respectiv } \left\langle \mathbf{F}_{twDEP} \right\rangle = F_{0twDEP} \left(\nabla' \times \left(\nabla' V_{R}' \times \nabla' V_{I}' \right) \right), \tag{10}$$

unde s-au utilizat notatiile: $F_{0DEP} = \frac{3}{4} \varepsilon_m \tilde{K}_r \frac{V_0^2}{d^3}$ si respectiv $F_{0twDEP} = -\frac{3}{2} \varepsilon_m \tilde{K}_i \frac{V_0^2}{d^3}$.

Utilizand scalele d, d^2 / D , D / d si φ_0 (media initiala a fractiei volumice) pentru lungime, timp, viteza si respectiv volumul de particule, problema transportului macroscopic exprimata in termeni de variabile adimensionale este descrisa de urmatorul sistem de ecuatii [9]:

$$\mathbf{v}' = \mathbf{u}' + Q\mathbf{F}'$$
, unde: $\nabla \mathbf{u}' = 0$; $\frac{\partial \varphi'}{\partial t'} + \nabla \cdot \mathbf{j}' = 0$, unde: $\mathbf{j}' = \varphi' \mathbf{v}' - D\nabla \varphi'$. (11)

Simbolul " ' " reprezinta marimea adimensionala, $Q = F_{0DEP} d / 6\pi\eta a D$, F_{0DEP} provine din ecuatia (10).

Pentru parametrii problemei s-au considerat valori tipice, care permit compararea rezultatelor noastre cu cele din literatura de specialitate si in final validarea codurilor numerice.

Pe parcursul etapei de comparare/validare am considerat un sistem format din particule de dimesiune caracteristica (raza) *a*=200nm in apa ($\eta = 10^{-3}$ kgm⁻¹s⁻¹, $\rho = 10^{3}$ kgm⁻³, $D \approx 10^{-12}$ m²s⁻¹, $\varepsilon_m \approx 80$). Dimensiunea caracteristica a dispozitivului este d = 50µm. Pentru partea reala a factorului Clausius-Mossotti de valoare $K_R \approx 0.6$, corespunzand aproximativ valorii pentru particule de latex in apa, amplitudinea tensiunii aplicate $V_0 \approx 1$ V si o unda de deplasare (traveling wave) cu lungimea de unda $\lambda = 400$ µm, obtinem pentru parametrul adimensional din ecuatia (5) o valoare tipica $Q \approx 0.2$ [5,8].

Curgerea fluidului in microcanal este considerata laminara si este descrisa de un profil Poiseuille cu o valoare tipica maxima a vitezei de curgere de of $1~\mu m/s$.

2.2 Implementarea numerica a modelului matematic.

- Construirea programului pentru simularea dinamicii nanoparticulelor in camp electric si validarea programului prin comparatie cu rezultate publicate anterior:

Programele folosite pentru implementarea numerica a modelului matematic au fost scrise folosind FreeFEM++, un solver de ecuatii cu derivate bazat pe metoda elementul finit. Pentru validarea programelor s-au folosit cazuri particulare ale problemei noastre, care admit fie solutie analitica sau au fost rezolvate in lucrari publicate anterior in domeniu. Validarea programului de calcul al fortei dielectroforetice s-a realizat in cazul particular al neglijarii geometriei electrozilor [6,8,9]. S-a ales o geometrie descrisa de dimensiunile $d_1=d_2=d=50\mu m$ si h=10d si conditii la frontiera ca si in figura 10.

Rezultatele obtinute pentru amplitudinile vectorilor $\nabla' \left(|\nabla' V_R'|^2 + |\nabla' V_I'|^2 \right)$ si $\nabla' \times \left(\nabla' V_R' \times \nabla' V_I' \right)$,

proportionali cu valorile adimensionale ale fortelor DEP si twDEP date de ecuatiile (4) sunt in foarte buna concordanta cu rezultatele din literatura. O validare cantitativa mai precisa a programului de calcul al fortei dielecroforetice s-a facut prin compararea solutiei numerice calculate cu programul nostru cu o solutie analitica propusa in literatura si arata o concordanta perfecta in lucrarea grupului publicata [8].

2.3 Studiu numeric asupra mobilitatii si ratei de dispersie a nanoparticulelor aflate in mediu fluid atunci cand sunt supuse actiunii campului electric pentru a fi retinute sau separate

- Studiul rolului dimensiunii particulelor, influentei proprietatilor fizice ale particulelor si fluidului; determinarea parametrilor fizici pentru functionarea optima a dispozitivului:

Pentru a studia efectul dimensiunii particulelor asupra procesului de transport, s-au realizat simulari pentru particule cu raze cuprinse intre 100 si 300 nm. Rezultatele obtinute pentru campul de concentratie in cazul particulelor cu razele a=100nm si a=200nm sunt prezentate in Figura 6a [8,9]. Rezultatele arata ca pe masura ce dimensiunea particulelor scade, scade si intensitatea fortei dielectroforetice care actioneaza asupra acestora, atata in cazul pDEP cat si in cazul nDEP.

Studiul influentei proprietatilor fizice ale particulelor si fluidului s-a facut prin intermediul parametrului Q, care contine in expresia sa atat caracteristici ale fluidului (η , ρ , D, ε_m), cat si ale particulelor (raza a, Figura 12 a). Influenta parametrului Q asupra campului de concentratie este prezentata in Figura 12b). In cazul pDEP, dar si al nDEP, rezultatele arata ca pe masura ce parametrul Q creste (fenomen ce poate fi produs de marirea tensiunii de alimentare, sau de scaderea vascozitatii, a coeficientului de difuzie, a distantei caracterisitice, sau a razei particulelor) creste si valoarea fortei dielectroforetice.



Figura 12: Profilurile de concentratie φ / φ_0 calculate de-a lungul verticalei dispozitivului experimental pentru a) doua dimensiuni ale particulelor, b) mai multe valori ale parametrului Q.

Un studiu amanuntit al efectului geometriei electrozilor asupra fortei dielectroforetice este prezentat in [7,8].

O alta etapa importanta a studiului nostru o constituie calcularea traiectoriilor particulelor supuse fortei DEP [8,9]. Pentru determinarea traiectoriilor, s-a integrat ecuatia de miscare $\mathbf{x} = \mathbf{x}_0 + \mathbf{v}_0 t + 1/2 \mathbf{a} t^2$ pentru diferite pozitii initiale \mathbf{x}_0 ale particulelor. Rezultatele simularilor realizate pentru geometria din figura 10 confirma comportamentul estimat al particulelor sub actiunea fortelor dielectroforetice: in cazul pDEP particlele sunt atrase catre marginle electrozilor (figura 13a), in cazul nDEP particulele sunt respinse catre centrul microcanalului (figura 13b), deci forta DEP actioneaza pe directia verticala. Calcule similare arata ca forta twDEP produce miscari oscilatorii sau rectilinii, avand drept efect deplasarea transversala a particulelor.



Figura 13: Traiectoriile calculate pentru particula cu raza a=200nm in cazul pDEP a) si nDEP b), la diferite pozitii initiale ale particulelor.

Figura 14 prezinta analiza variatiei pe verticala a fortei DEP adimensionale, functie de inaltimea adimensionala w a electrozilor de forma rectangulara, realizata la stanga domeniului (x=0), mijlocul electrozilor (x=0.25), coltul electrozilor (x=0.5) si mijlocul domeniului (x=1). Se observa ca prin cresterea grosimii electrozilor se obtine doar o translatere a fortei DEP, fara sa afecteze modul de variatie al acesteia.





Figura 14: Variatia verticala a fortei DEP adimensionale, pentru electrozi rectangulari de diverse inaltimi la: x=0,a), x=0.25, b), x=0.5, c) si x=1, d).

Efectul fortelor dielectroforetice asupra suspensiei la scara macroscopica s-a studiat integrand ecuatia de transport de masa (11). Pentru expresia fortei dielectroforetice pot fi luate in considerare o expresie analitica [8], sau pentru o descriere mai realista valoarea calculata numeric [14,15]. Valoarea parametrului Q poate fi modificata prin intermediul tensiunii aplicate: prin cresterea sau descresterea amplitudinii tensiunii, Q creste sau scade dupa o lege patratica. De asemenea, prin modificarea frecventei semnalului aplicat, semnul lui Q poate fi schimbat. In figura 14 sunt prezentate doua exemple calculate de campuri de concentratie stationare. Profilele de concentratie rezultate arata acumularea particulelor in apropierea frontierelor pentru Q > 0 sau in centrul microcanalului pentru Q < 0, situatii ce corespund la pDEP si respectiv nDEP.



Figura 14: Rezultate numerice obtinute pentru campul stationar de concentratie pentru a) pDEP (Q = +0.2), b) nDEP (Q = -0.2).

Un studiu asemanantor efectuat pe geometria prezentata in figura 9b, arata ca de data aceasta rolul fundamental in deplasarea particulelor il revine fortei twDEP [18,19].

Efectul vitezei de curgere asupra concentratei a fost studiat in [18]. Calculele au fost realizate luand in consideratie si geometria electrozilor. Campurile de concentratie stationare calculate la doua viteze diferite de curgere ale fluidului (v=1 si v =100) pentru Q = 0.2 (pDEP) sunt prezentate in cadrul rezultatelor de la etapa 2013 si evidentiaza rolul pe care il are viteza de curgere a fluidului purtator asupra particulelor.

La finalul etapei a fost creat un site internet al proiectului, la adresa <u>www.nanodep.com</u>, cu: denumirea si scopul proiectului, rezultatele obtinute pana in prezent, membrii echipei, date de contact si diverse informatii utile privind manipularea nanoparticulelor in medii fluide sub actiunea dielectroforezei.

Rezultatele obtinute in cadrul etapei 2012 au fost diseminate in conferinte nationale/ internationale, precum si publicate sau trimise spre publicare in reviste cotate ISI, conform listei de la finalul raportului, utilizate si pentru referintele bibliografice din textul raportului.

Concluzii

Ansamblul rezultatelor obtinute prin simulari numerice bazate pe modelul matematic propus arata ca fortele dielectroforetice pot fi folosite cu succes in manipularea micro si nanoparticulelor. Pe baza acestor rezultate se pot intelege mai bine procese fizice care au loc in interiorul dispozitivului experimental si in acelasi timp se pot obtine un set de parametri optimali pentru functionarea acestuia. O discutie asupra eficientei de separare a unui dispozitiv dielectroforetic este prezentata in etapa urmatoare.

Etapa III (ianuarie – decembrie 2013)

Obiective principale:

3. Simularea numerica a comportamentului suspensiilor de particule nanometrice intr-un mediu fluid sub actiunea dielectroforezei, in scopul retinerii lor si filtrarii gazelor de ardere.

3.1 Studiul influentei caracteristicilor particulelor, mediului si dispozitivului de separare.

3.2 Stabilirea parametrilor sistemului pentru realizarea unei captari optime a nanoparticulelor.

S-a analizat comportamentul nanoparticulelor de diferite dimensiuni sub actiunea dielectroforezei intr-un dispozitiv de separare microfluidic: influenta vitezei de curgere, tensiunii aplicate pe electrozi, dimensiunea si amplasarea acestora, dimensiunea celulei de separare, traiectoriile particulelor, dependenta de frecventa a permitivitatii complexe si factorului Clausius Mossotti caracteristice particulelor analizate. S-au Identificat setului de parametri geometrici (ai sistemului de separare microfluidic), electrici (tensiunea aplicata pe electrozi, dependenta factorului Clausius Mossotti de frecventa tensiunii aplicate) si fizico-chimici ai problemei (caracteristici de material ale substantelor folosite) care, corelati cu natura si dimensiunea particulelor, sa conduca la optimizarea procesului de captare a nanoparticulelor.

Activitati efectuate:

- Studiul influentei vitezei de curgere asupra distributiei nanoparticulelor intr-un dispozitiv microfluidic

Acest aspect a fos analizat prin determinarea concentratiei pentru diferite intensitati ale curgerii, descrise de valori adimensionale ale vitezei de curgere in domeniul 1 – 1000. Aceste valori corespund unui dispozitv cu dimensiunile $h = 200 \mu m$ si $L = 1000 \mu m$ (figura 9a), in interiorul caruia vitezele au valori de la 1 la 1000 $\mu m/s$. In figurile 15 si 16 se arata valorile campurilor de concentratie pentru doua valori ale vitezei (v=1 si v=100), pentru Q = 0.2 (p-DEP) si respectiv Q = -0.2 (n-DEP). Aceste rezultate evidentiazafaptul ca nanoparticulele aflate in suspensie au tendinta sa se concentreze pe pereti in cazul dielectroforezei pozitive (pDEP) si in centrul canalului, in cazul dielectroforezei negative (nDEP). Se observa clar efectul vitezei.







Figura 16: Campurile de concentratie pentru nDEP (Q=-0.2) la v =1 a), si v =100 b).

O analiza mai rafinata privind variatia concentratiei stationare s-a facut pentru diferite pozitii in interiorul dispozitivului microfluidic de separare. Coordonatele adimensionale x=0, x=0.5 si respectiv x=1, corespund marginii din stanga a domeniului de calcul, marginii din dreapta a electrodului din stanga si respectiv mijlocul distantei dintre electrozi. Figurile 17a) si 17b) arata variatia pe verticala a concentratiei

pentru diferite valori ale coordonatei orizontate in cazul pDEP, iar figurile 18a) si 18b) in cazul nDEP, pentru valori ale vitezei de curgere adimensionale v=1 si v=100.



Figura 17: Variatia concentratiei in cazul pDEP pentru v =1 a) si v =100 b).



Figura 18: Variatia concentratiei in cazul nDEP pentru v =1 a) si v =100 b).

- Determinarea campurilor de concentratie ale suspensiilor de nanoparticule in dispozitivul de filtrare microfluidic, analiza prin marimi specifice a unui proces de separare.

In aceasta etapa, studiul numeric se ocupa de calculul campului de concentratii al nanoparticulelor aflate in suspensie in gazul de ardere, in interiorul unui dispozitiv de separare microfluidic. Deoarece fluidul considerat este un gaz pentru care $\varepsilon_r \sim 1$, se considera doar componenta pDEP a fortei dielectroforetice. Rezultatele separarii nanoparticulelor au fost analizate prin prisma a trei noi parametri, numiti *Recovery*, *Purity* si *Separation Efficiency*, corelati cu campul de concentratii. Acesta conceptie ofera o caracterizare mai sugestiva a capabilitatii dispozitivului referitoare la procesul de separare a nanoparticulelor din gazul de ardere. Simularile numerice au fost efectuate cu softurile FreeFEM++ si COMSOL, bazatepe metoda elementelor finite. Pentru calculul fortelor dielectroforetice s-au rezolvat ecuatiile Laplace (7) pentru partile reala si imaginara a potentialului, impreuna cu conditiile pe frontiera. Domeniul de calcul si conditiile pe frontiera sunt prezentate in figura 19, pentru cazul particular *d=l=* 30 µm si *H=2d=* 60 µm.



Figura 19: Geometria domeniului de calcul si conditiile pe frontiera pentru partea reala a fazorului potentialului electric V_R .

Variatia marimii vectorul $\nabla' (|\nabla' V_R'|^2 + |\nabla' V_I'|^2)$, proportional cu forta DEP adimensionalizata, este prezentata in figura 20:



Figura 20: Valorile calculate ale fortei DEP adimensionale, la scara logaritmica, evidentiaza o variatie logaritmica.

Bazat pe variatia periodica a fortei DEP, se va considera pe mai departe modelul analitic dat de ecuatiile (10). Pentru a simula comportamentul suspensiei de nanoparticule din gaze de ardere in dispozitivul de separare, ecuatiile (9), si forta data de (10) se rezolva pentru diferite valori ale parametrului Q, care descrie influenta globala a marimilor fizice ce intervin in procesul de separare: tensiune aplicata pe electrozi, raza nanoparticulelor, perimitivitatea acestora. Pentru a obtine o valoare de referinta pentru acest parametru, s-a considerat o suspensie de nanoparticule cu raza a=100 nm in aer, partea reala a factorului Clausius-Mossotti K_R =1 pentru particolele din suspensie, amplitudinea potentialuluii electric aplicat pe electrozi V_0 =10 V si lungimea undei de propagare (trawelling wave) λ =120µm. S-a obtinut valoarea numarului de unda adimensional valoarea $b = \pi$ si $Q \approx 1$. In figura 21 se prezinta corelatia dintre tensiunea aplicata V si raza nanoparticulelor, pentru diferite valori ale factorului Q.



Figura 21: Corelatie intre tensiunea aplicata *V* si raza nanoparticulelor *a*, pentru diferite valori ale factorului *Q*.

In figura 22 se arata campul de concentratie calculat al particulelor aflate in suspensie sub influenta dielectroforezei pozitive (particulele fiind atrase catre electrozi) pentru Q=1 (a=100 nm , $K_R=1$, $V_0=10$ V , $\lambda = 120 \mu$ m), cu rosu fiind delimitata zona de interes considerata in continuare pentru estimarea separarii:



Figura 22: Campul de concentratie calculat al particulelor aflate in suspensie sub influenta dielectroforezei pozitive pentru Q = 1, a), detaliu cu zona de separare b).

Se observa o stratificare pe verticala a concentratiei, ceea ce permite utilizarea pe mai departe a unei singure variabile spatiale C(y) pentru aceasta. Figura 22 b) releva un detaliu cu zona de interes din figura 22a), considerand in partea stanga intrarea nanoparticulelor (imput) iar in dreapta partea de separare (output). Pentru a se obtine o separare eficienta a nanoparticulelor din gazul de ardere trebuie colectate cat mai multe particule, dar la o valoare a concentratiei cat mai mare. Astfel, este de dorit o valoare medie h a inaltimii colectorului de separare (zona de separare la iesire) ($0 \le h \le H$). Pentru h mic se separa un fluid concentrat dar continand o cantitate mica de nanoparticule, pe cand pentru h mare se colecteaza particule mai multe, dar in concentratie redusa. Dupa cum se arata in figura 23, densitatea particulelor la iesire scade cu h, la volori mici ale acesteia depinzand de intensitatea fortei dielectroforetice Q.



Figura 23: Valorile calculate ale densitatii particulelor la iesire pentru diferite valori *h* si *Q*.

Pentru analiza cantitativa a procesului de separare s-au definit urmatoarele marimi:

- Cantitate de particule recuperate la iesire (produs), numita Recovery (R):

$$R = \int_0^h C(y) dy \tag{12}$$

- Densitatea particulelor la iesirea din zona de separare considerata:

$$n_h = (1/h) \int_0^h C(y) dy$$
 (13)

- Calitatea separarii sau Purity (P) (fractia de nanoparticule separate la iesire:

$$P = \frac{n_h - n_0}{n_{\max} - n_0}$$
(14)

 $n_0 = 1$ este valoarea densitatii particulelor in absenta fortei DEP, n_{max} densitatea lor la $h \rightarrow 0$. P = 1 corespunde valorii maxime a concentratiei de particule in produs, iar R = 1 corespunde cazului cand tot materialul ajunge in produs.

- Eficienta separarii numita Separation Efficiency (SE), definita ca:

$$SE = R + P - 1 \tag{15}$$

In continuare se discuta importanata acestor factori in procesul de separare a nanoparticulelor din gaze de ardere intr-un dispozitiv de separare microfluidic sub actiunea dielectroforezei.

Figura 24a) prezinta valorile calculate pentru *Recovery, Purity* si *Separation Efficiency* la diferite marimi ale inaltimii colectoruli de separare *h*, pentru un dispozitiv de separare avand electrozi si spatiul interelectrodic $d = l = 30 \mu m$, la o tensiune aplicata pe electrozi $V_0 = 10$ V pentru trei valori ale razelor particulelor: *a*=50, 100 si 150 nm. Figura 24 b) este un detaliu care pune in evidenta valorile optime de separare: intersectiile *RP* si maximele pentru *SE*.



Figura 24: *Recovery, Purity* si *Separation Efficiency* functie de inaltimea colectorului de separare *h*, pentru razele: *a*=50, 100, 150 nm, a), detaliu b). Subscripturile din legenda si de pe grafice denota razele particulelor.

Se observa ca in toate cazurile *Separation Efficiency* creste cu *h*, obtine un maxim la aproximativ intersectia *Recovery* – *Purity*, apoi descreste, raza particulelor avand o influenta destul de mica. Crescand *h*, cantitatea de particule la iasire *R* creste dar scade puritata *P*. Prin urmare, este necesar un compromis intre materialul recuperat in produs si puritatea produsului. O alegere rezonabila pentru acest compromis

este maximul curbei *SE*. Conform diagramei de separare din figura 11 b),acuratete maxima separare se obtine pentru *h* intre 0.41H si 0.48H (zona hasurata din stanga, intre valorile maxime stanga-dreapta ale *SE*, corespunzatoare razelor de 50 si 150 nm). Pe de alta parte, luand in considerare intersectiile stangadreapta ale diagramelor *RP*, (zona hasurata din dreapta, care corespunde de asemenea la a = 50 si a = 150nm), se obtine pentru *h* intre 0.47*H* si 0.53*H*. Modul optim de separare s-a obtinut pentru valori ale lui *h* in domeniul 0,47 - 0.48*H* (zona dublu hasurata din mijloc, obtinuta prin intersectia zonelor hasurate stanga-dreapta), pentru care unul atinge valorile *R*, *P* ~ 0,67, corespunzand compromisului mentionat.

- Influenta parametrilor asupra traiectoriilor particulelor

In aceasta etapa s-a realizat o analiza numerica mai rafinata privind influenta principalilor parametri ce intervin in procesul de separare asupra traiectoriilor particulelor, sub actiunea fortei *trawelling*DEP. Acestea au fost calculate prin integrarea ecuatiei de miscare $\mathbf{x} = \mathbf{x}_0 + \mathbf{v}_0 t + 1/2 \mathbf{a} t^2$ utilizand expresia fortei *tw*DEP (10). Curgerea s-a considerat laminara, find descrisa de un profil de curgere de tip Poiseuille cu valoarea maxima a vitezei de curgere in canalul dispozitivului de separare microfluidic de 10 µm/s, lungimea caracteristica a dispozitivului fiind d = 50µm. Figura 25 prezinta un set de rezultate numerice relevante privind influenta parametrilor asupra traiectoriilor.



Figura 25: Influenta principalilor parametri asupra traiectoriilor, sub actiunea fortei *tw*DEP.

- Analiza comportamentului dielectric a particulelor preluate din cenusi de ardere (dependenta de frecventa a permitivitatii complexe si factorului Clausius Mossotti caracteristice particulelor analizate).

In aceasta etapa s-a realizat un studiu preliminar privind posibilitatea de a capta nanoparticulele din gazele de ardere utilizand dielectroforeza, in scopul imbunatatirii proceselor de filtrare. Proba utilizata pentru masuratori dielectrice a fost o pulbere de particule submicronice rezultata din procesele de ardere a deseurilor, prelevata din filtrele de gaze de ardere ale incineratorului de deseuri Pro Air Clean Timisoara.

Analiza a constat in determinarea factorului Claussius- Mossotti (CM) In camp de joasa frecventa (25 Hz-2MHz). Masuratorile componentelor reala, si imaginara, a permitivitatii dielectrice complexe s-au efectuat cu ajutorul unui aparat numit RLC- metru Agilent type (E4980A), la care a fost conectat un condensator cilindric, In care proba de cenusa a fost introdusa. Pentru o temperatura constanta, si o frecventa gama investigata, au fost masurate capacitatea C si factorul de calitate Q al condensatorului, atat In prezenta probei (C_{ρ} , Q_{ρ}) cat si In absenta ei (C_{0} , Q_{0}).

Componentele ε' si ε'' ale permitivitatii dielectrice complexe au fost determinate folosind urmatoarele relatii [19]:

$$\varepsilon' = \frac{C_p}{C_0}; \ \varepsilon'' = \frac{Q_0 C_p - Q_p C_0}{Q_p Q_0 C_0}$$
 (16)

Proba de cenusa utilizata pentru masuratori dielectrice este un amestec de micro/nanoparticule dispersate in aer. In acest caz, permitivitatea dielectrica complexa a amestecului se obtine din masuratori dielectrice, pornind de la relatia:

$$\tilde{\mathcal{E}}_{eff} = \mathcal{E}'_{eff} - i \mathcal{E}''_{eff} \tag{17}$$

In ecuatia (17) $\varepsilon_{eff}^{"}$ si $\varepsilon_{eff}^{"}$, sunt partea reala si imaginara a permitivitatii dielectrice complexe. Frecventa depinde de componentele reala $\varepsilon_{eff}^{"}$ si imaginara $\varepsilon_{eff}^{"}$ a permitivitatii dielectrice complexe $\varepsilon_{eff}^{"}$ investigata In proba de cenusa, dispersata In aer, pentru diferite fractii de volum Φ ale particulelor din amestec si este prezentata In figura 26. Dupa cum se poate observa din figura 26a), pentru fiecare fractie volumica Φ partea reala a permitivitatii dielectrice efective $\varepsilon_{eff}^{"}$ scade cu frecventa, de la o valoare de 1.8 la o valoare aproximativ de 1.2. Componenta imaginara a permitivitatii dielectrice efective $\varepsilon_{eff}^{"}$ scade cu frecventa pentru fiecare fractie volumica constanta Φ de la valori mari la 0 (figura 26 b). Valorile mari ale lui $\varepsilon_{eff}^{"}$ la Inceputul masuratorilor In domeniul de frecventa indica faptul ca In proba sunt pierderi mari de conductie (figura 26 b), acest fapt fiind aratat si In analiza EDAX (figura 31 b), acolo se indica un continut ridicat de carbon (fractia atomica fiind peste 68%).



Figura 26: Dependenta de frecventa a componentelor partii reale \mathcal{E}_{eff} , si imaginare \mathcal{E}_{eff} a permitivitatii dielectrice complexe $\tilde{\mathcal{E}}_{eff}$ la diferite fractii volumice Φ ale particulelor.

Deasemenea, pe Intregul domeniu de frecventa atat ε_{eff} cat si ε_{eff} cresc cu fractia volumica, pentru o frecventa constanta. Pentru constanta dielectrica a sistemelor mixte s-au facut numeroase abordari care implica studii teoretice, dar si studii experimentale. O metoda simpla de a estima constanta dielectrica efectiva a unui sistem mixt, continand doua faze, este modelul fractiei medii volumice [19]:

$$\mathcal{E}_{eff} = (1 - \Phi)\mathcal{E}_m + \Phi\mathcal{E}_p \tag{18}$$

unde Φ este fractia volumica a particulelor din amestec.

Pentru a investiga cenusa dispersata In aer am utilizat forma complexa pentru constanta dielectrica din ecuatia (9) iar componentele partii reale ε'_p si imaginare ε''_p ale particulelor s-au calculate cu ecuatia (10). Daca mediul de dispersie este aer, am utilizat In ecuatia (9) urmatoarele valori pentru componentele permitivitatii dielectrice complexe: $\varepsilon'_m(air) = 1$ si $\varepsilon''_m(air) = 0$. Astfel s-a obtinut:

$$\varepsilon_{p} = \frac{\varepsilon_{eff} - 1 + \Phi}{\Phi}, \quad \varepsilon_{p}^{"} = \frac{\varepsilon_{eff}^{"}}{\Phi}, \quad (19)$$

Dependenta de frecventa a componentelor ε_p si ε_p a permitivitatii dielectrice complexe a particulelor de cenusa a fost calculata cu ecuatia (10), pentru diferite fractii volumice Φ si este prezentata In figura 27.



Figura 27: Dependenta de frecventa a componentelor reala (ε'_p) si imaginara (ε''_p) a permitivitatii dielectrice complexe din particulele de cenusa la diferite fractii volumice Φ , dispersate In aer.

Dupa cum se observa In figura 27 a), pentru fiecare fractie volumica Φ , partea reala a permitivitatii dielectrice a particulelor de cenusa ε_p^{*} scade cu frecventa de la o valoare 3 pana la aproximativ 2. Componenta imaginara a permitivitatii dielectrice a particulelor ε_p^{*} are aproximativ aceiasi valoare pentru toate fractiile volumice Φ si scade cu frecventa de la valori mari la 0 (figura 27 b). Valorile mari ale lui ε_p^{*} la Inceputul masuratorilor In domeniul de frecventa indica faptul ca In proba sunt pierderi mari de conductie (figura 27 b).

Introducand In ecuatiile (5) si (6) valorile calculate pentru ε_p^{\cdot} si ε_p^{\cdot} (figura 27) si considerand ca mediul de dispersie este aer ($\varepsilon_{air}^{\prime} = 1$ si $\varepsilon_{air}^{\prime \prime} = 0$) putem determina partea reala $\operatorname{Re}\left[\tilde{K}(\omega)\right]$ si partea imaginara $\operatorname{Im}\left[\tilde{K}(\omega)\right]$ a factorului Clausius-Mossotti. Dependenta de frecventa a partii reale $\operatorname{Re}[\tilde{K}(\omega)]$ si partii imaginare $\operatorname{Im}[\tilde{K}(\omega)]$ a factorului Clausius-Mossotti este aratata In figura 28.



Figura 28: Dependenta de frecventa a componentelor reala $\operatorname{Re}[\tilde{K}_{p-air}(\omega)]$ si imaginara $\operatorname{Im}[\tilde{K}_{p-air}(\omega)]$ a factorului Clausius-Mossotti pentru diferite fractii volumice Φ ale particulelor din proba, dispersate In aer

Asa cum se observa In figura 28, dependenta de frecventa a componentelor reala si imaginara a factorului Clausius-Mossotti se potriveste cu dependenta de tip Debye [7], Partea reala a factorului Clausius-Mossotti $\operatorname{Re}\left[\tilde{K}_{p-air}(\omega)\right] > 0$, In tot domeniul de frecventa investigat. Prin urmare avem dielectroforeza pozitiva iar In acest caz se poate face o filtrare a gazelor de ardere cu pDEP, aici nanoparticulele sunt captate In zona cu camp mai puternic. Componenta imaginara a factorului Clausius-Mossotti $\operatorname{Im}\left[\tilde{K}_{p-air}(\omega)\right]$ prezinta un maxim la aceeasi frecventa, $f_c = 1.125 \ kHz$, indiferent de fractia volumica Φ a particulelor de cenusa dispersate In aer. Frecventa corespunzatoare maximului componentei imaginare a factorului CM la frecventa f_c , (figura 28) este corelata cu timpul de relaxare τ_{MW} prin relatia Debye $2\pi f_c \tau_{MW} = 1$. De unde putem observa ca timpul de relaxare dipolar Maxwell-

Wagner, fiind tipic particulelor dielectrice si cu pierderi de conductie, suspendate Intr-un mediu asemanator, cu aplicatii importante In manipularea dielectroforetica de nanoparticule [19].

Deoarece factorul Clausius-Mossotti reprezinta o masura a permitivitatii relative Intre particule si mediu, componenta reala $\operatorname{Re}\left[\tilde{K}(\omega)\right]$ determina semnul fortei dielectroforetice.

Am analizat din punct de vedere teoretic semnul componentei reale a factorului Clausius-Mossotti atunci cand particulele de cenusa sunt dispersate Intr-un mediu fara pierderi, a caror permitivitate dielectrica ε_m variaza de la 3 la 10. Pentru aceasta In ecuatiile (18) si (19) am utilizat valorile calculate pentru $\varepsilon_p^{,}$ si $\varepsilon_p^{,}$ (figura 27) si am considerat doua cazuri pentru mediul de dispersie: 1) $\varepsilon_{m,1}^{'} = 3$ si $\varepsilon_{m,1}^{''} = 0$; 2) $\varepsilon_{m,2}^{'} = 10$ si $\varepsilon_{m,2}^{''} = 0$, determinand In ambele cazuri componenta reala $\operatorname{Re}\left[\tilde{K}_{p-m}(\omega)\right]$ si imaginara $\operatorname{Im}\left[\tilde{K}_{p-m}(\omega)\right]$ a factorului Clausius-Mossotti.

Cu aceste conditii relatiile pentru Re
$$\begin{bmatrix} \tilde{K}_{p-m}(\omega) \end{bmatrix}$$
si Im $\begin{bmatrix} \tilde{K}_{p-m}(\omega) \end{bmatrix}$ sunt:
Re $\begin{bmatrix} \tilde{K}(\omega) \end{bmatrix} = \frac{\varepsilon_p^{\prime 2} + \varepsilon_p^{\prime 2} + \varepsilon_p^{\prime 2} + \varepsilon_p^{\prime 2} - 2\varepsilon_m^{\prime 2}}{\varepsilon_p^{\prime 2} + \varepsilon_p^{\prime 2} + \varepsilon_p^{\prime 2} + 4\varepsilon_p^{\prime 2} + 4\varepsilon_m^{\prime 2}}$ (20)

$$\operatorname{Im}\left[\tilde{K}(\omega)\right] = \frac{3\varepsilon_{p}^{"}\varepsilon_{m}^{'}}{\varepsilon_{p}^{'^{2}} + \varepsilon_{p}^{"^{2}} + 4\varepsilon_{p}^{'}\varepsilon_{m}^{'} + 4\varepsilon_{m}^{'^{2}}}$$
(21)

Utilizand aceste relatii am reprezentat grafic dependenta de frecventa a acestor componente pentru doua valori ale fractiei volumice a particulelor de cenusa dispersate Intr-un mediu lichid ($\Phi = 0.25$ si $\Phi = 0.42$), figura 29.



Figura 29: Dependenta de frecventa a componentelor reala $\operatorname{Re}[\tilde{K}_{p-m}(\omega)]$ si imaginara $\operatorname{Im}[\tilde{K}_{p-m}(\omega)]$ a factorului Clausius-Mossotti pentru doua fractii volumice ale particulelor $\Phi = 0.25$ (a) si $\Phi = 0.42$ (b) dispersate In fluide cu $\varepsilon_m = [3,10]$.

Dupa cum se observa In figura 29, pentru amandoua fractiile volumice analizate ale particulelor de cenusa dispersate Intr-un mediu fluid cu permitivitatea dielectrica $\mathcal{E}_m = [3,10]$, componenta reala $\operatorname{Re}[\tilde{K}_{p-m}(\omega)]$ a factorului Clausius-Mossotti schimba semnul, trecand de la valori pozitive la valori negative. Schimbarea de semn are loc la o frecventa critica f_c , care descrestere de la 1.416 kHz la 0.31 kHz (pentru $\Phi = 0.25$) si de la 1.730 kHz la 0.335 kHz (pentru $\Phi = 0.42$), daca permitivitatea dielectrica a mediului creste de la 3 la 10. Ca urmare, are loc o trecere de la dielectroforeza pozitiva (pDEP) la dielectroforeza negativa (nDEP), si particulele pot fi deplasate de la regiuni cu gradient de camp ridicat catre regiuni cu gradient de camp scazut. Acest rezultat arata ca este posibila separarea selectiva a nanoparticulelor, In functie de frecventa campului electric, mediul de dispersie si proprietatiile fizice ale nanoparticulelor de cenusa. Rezultatele arata ca daca pulberea de cenusa este dispersata In aer, $\operatorname{Re}\left[\tilde{K}_{p-air}(\omega)\right] > 0$ pentru toate frecventele din domeniul investigat. Ca urmare este posibila o filtrare a gazelor de ardere utilizand dielectroforeza pozitiva prin atragerea particulelor In zonele de camp intens.

4. Modelari experimentale preliminare captarii nanoparticulelor din gaze de ardere.

4.1. Analiza particulelor emise la incineratorul Pro Air Clean Timisoara.

Probele utilizate au constat in 4 esantioane reprezentative, preluate din cenusile de ardere colectate din filtrele incineratorului Pro Air Clean Timisoara, pe o perioada de 6 luni (Iunie- Noiembrie 2013). S-a urmarit:

- Determinarea compozitiei chimice prin utilizarea aparaturii existentein dotarea Pro Air Clean Timisoara

Tabelul 1 prezinta analiza AAS pentru probele de cenusa, realizata cu ajutorul spectrofotometrului KONTRAA 700, care arata continutul metalic si de carbon organic (TOC) continut in probe. De exemplu, concentratia mare de aluminiu (16,64%) in proba 0 determina o conductivitate ridicata in proba si sustine ipoteza ca valoarea ridicata pentru factorul CM apare la frecvente joase.

	Continut							
Elemente Chimice	Proba 0		Proba 1		Proba 2		Proba 3	
ennice	mg/kg	%	mg/kg	%	mg/kg	%	mg/kg	%
Al	166440	16,64	3890	0,39	3480	0,35	44890	4,5
Cd	328	0,033	198	0,02	198	0,02	248	0,025
Со	100	0,01	122	0,012	122	0,012	99	0,01
Cr	110	0,01	98	0,01	98	0,01	105	0,01
Cu	1450	0,145	4490	0,45	4490	0,45	4230	0,42
Fe	39670	3,97	13980	1,4	34980	3,5	56970	5,7
Mn	5390	0,54	148	0,15	159	0,16	890	0,09
Ni	500	0,05	390	0,04	190	0,02	328	0.033
Pb	9870	0,99	510	0,05	970	0,1	700	0,07
Sb	140	0,014	108	0,01	98	0,01	100	0.01
Zn	48760	4,88	17980	1,8	78980	7,9	5390	0,54
TOC ¹	31980	3.2	27870	2.8	23950	2.4	39980	4.0

Tabelul 1: Continutul metalic din probele de cenusa

- Analize dimensionale cu microscopul Nanosight LM 10, achizitionat in etapa 2012 a proiectului

Pentru masuratorile dimensionale, s-a preparat pentru fiecare din cele 4 probe de cenusa, un amestec de 5 mg pulbere si 100 ml apa distilata la temperatura camerei, lasand amestecul la prima masuratoare 20 minute, pentru ca microparticulele sa se decanteze, iar la cea de-a doua masuratoare inca 10 minute. De fiecare data, dupa decantarea particulelor micrometrice, s-a colectat lichidul ramas si apoi am analizat dimensiunea/ distributia concentratiei particulelor utilizand sistemul de vizualizare a nanoparticulelor Nano Sight LM10. Acest dispozitiv determina distributia marimii nanoparticulelor in sisteme polidisperse si eterogene, utilizand metoda Nanoparticle Tracking Analysys (NTA).

Proba 0

Figura 30a) prezinta un cadru video, iar figura 30b) ilustreaza dimensiunea/distributia concentratiei particulelor pentru proba 0, dupa o decantare de 20 de minute, date de raportul de analiza generat de software-ul nanoscopului LM 10. Diagrama de distributie indica faptul ca s-au obtinut patru marimi semnificative pentru raza particulelor, la valori de 55 nm, 100 nm, 155 nm si respectiv 275 nm.

Pentru urmatoarele 3 probe s-au realizat cate doua masuratori pentru fiecare proba (dupa 20 de minute de decantare si dupa alte 10 minute de decantare).

Figura 31 reda spectrul de difractie cu raze X, a) si compozitia probei 0, b), determinata prin analize EDAX. Analiza EDAX indica un continut ridicat de carbon anorganic, asa cum era de asteptat, in cazul in care Wt (%) reprezinta fractia masica si A_t (%) este fractia atomica, in procente.

¹ Pentru functionarea corecta a incineratorului, concentratia TOC nu trebuie sa depaseasca 4%.



Figura 30: Cadru video dat de raportul de analiza a) si dimensiunea/distributia concentratiei particulelor pentru proba 0, b), obtinute cu ajutorul sistemul de vizualizare a nanoparticulelor Nano Sight LM10.



Figura 31: Spectrul de difractie cu raze X pentru cenusa investigata a), analiza EDAX, b)

Proba 1

Figura 32a) ilustreaza dimensiunea/distributia concentratiei particulelor pentru proba 1, dupa 20 de minute de decantare. Diagrama de distributie indica faptul ca s-au obtinut cinci marimi semnificative pentru raza particulelor, la valori de 70 nm, 115 nm, 148 nm si 189 nm si 266 nm. Figura 32b) ilustreaza dimensiunea/distributia concentratiei particulelor pentru proba 1, dupa alte 10 minute de decantare. Diagrama de distributie indica faptul ca s-au obtinut trei marimi semnificative pentru raza particulelor, la valori de 70 nm, 115 nm, 148 nm si 189 nm si 266 nm. Figura 32b) ilustreaza dimensiunea/distributia concentratiei particulelor pentru proba 1, dupa alte 10 minute de decantare. Diagrama de distributie indica faptul ca s-au obtinut trei marimi semnificative pentru raza particulelor, la valori de 45 nm, 93 nm si 154 nm.



Figura 32: Dimensiunea/distributia concentratiei particulelor pentru proba 1, obtinuta cu ajutorul sistemului de vizualizare a nanoparticulelor, Nano Sight LM10, dupa 20 de minute de decantare a) si dupa 30 de minute de decantare b).

Proba 2

Figura 33a) ilustreaza dimensiunea/ distributia concentratiei particulelor pentru proba 2, dupa 20 minute de decantare. Diagrama de distributie indica faptul ca s-au obtinut patru marimi semnificative pentru raza

particulelor, la valori de 44 nm, 67 nm, 109 nm si 180nm. Figura 33b) ilustreaza dimensiunea/distributia concentratiei particulelor pentru proba 2, dupa alte 10 minute de decantare. S-au obtinut trei marimi semnificative pentru raza particulelor, la valori de 37 nm, 56 nm si 95 nm.



Figura 33: Dimensiunea/distributia concentratiei particulelor pentru proba 2, dupa 20 de minute de decantare a) si dupa 30 minute de decantare b).

Proba 3

Figura 34a) ilustreaza dimensiunea/ distributia concentratiei particulelor pentru proba 3, dupa 20 de minute de decantare. Diagrama de distributie indica faptul ca s-au obtinut cinci marimi semnificative pentru raza particulelor, la valori de 40 nm, 60 nm, 102 nm, 138 nm si 175 nm. Figura 34b) ilustreaza dimensiunea/ distributia concentratiei particulelor pentru proba 3, dupa alte 10 minute de decantare. S-au obtinut trei marimi semnificative pentru raza particulelor, la valori de 42 nm, 95 nm si 175 nm.



Figura 34: Dimensiunea/distributia concentratiei particulelor pentru proba 3, obtinuta cu ajutorul sistemului de vizualizare a nanoparticulelor Nano Sight LM10, dupa 20 de minute de decantare a) si dupa 30 de minute de decantare b).



Figura 35: Distributia concentratinutului metalic al particulelor pentru probele 2 si 3, obtinute prin analiza cu raze X. La proba 2 predomina Ca, iar la proba 3 predomina Zn.

4.2 Proiectarea si realizarea unui dispozitiv experimental

Pe baza rezultatelor obtinute in urma simularilor, s-a proiectat si este in curs de realizare in colaborare cu firma de incinerare deseuri Pro Air Clean Timisoara si Facultatea de Fizica, Universitatea Bucuresti, versiunea beta a unui dispozitiv experimental de laborator destinat retinerii particulelor nanometrice din gazele de ardere, in camp electric neuniform. Schema partilor inferioara si superioara a dispozitivului microfluidic de separare schitat in figura 9 este redata in figura 36a), iar diagrama Gerber aferenta (layoutul realizat la scara micrometrica), necesara realizarii dispozitivului experimental prin evaporare metalica si depunere in vid pe placa izolatoare, realizata la Universitatea Offenburg Germania, in figura 36b).



Figura 34: Schema partilor inferioara si superioara a dispozitivului microfluidic de separare a), diagrama Gerber reprezentand layout-ul la scara micrometrica b).

Din punct de vedere practic, s-au realizat cu ajutorul colectivului condus de dl. Prof. Dr. Stefan Antohe de la Facultatea de Fizica a Universitatii Bucuresti subansamble de proba ale dispozitivului experimental, constand in electrozi de Cu cu puritate 99.99% depusi in vid pe placute de sticla Fisher sub diferite geometrii (interdigitat si simplu), prezentate in figura 35.



Figura 34: Diverse subansamble ale dispozitivului experimental destinate captarii de nanoparticule din gaze de ardere – electrozi de Cu cu puritate 99.99% depusi in vid pe placute de sticla Fisher.

Concluzii

Rezultatele numerice obtinute in cadrul modelului matematic propus releva importanta influentei a catorva parametri fundamentali (natura si marimea particulelor, geometria dispozitivului, viteza de curgere, tensiunea aplicata pe electrozi, dimensiunea si forma acestora) asupra manipularii nanoparticulelor in vederea separarii lor si purificarii gazelor de ardere. Rezultatele obtinute arata

posibilitatea de a filtra gazele de ardere, in functie de proprietatile dielectrice ale particulelor si ale mediului de dispersie. In plus, rezultatele obtinute demonstreaza ca utilizarea DEP pentru manipularea particulelor submicronice poate imbunatati performanta dispozitivelor de filtrare, pentru a reduce emisiile de nanoparticule in aer, prin optimizarea filtrarii gazelor de ardere.

Analizele chimice au demonstrat existenta a numeroase metale in cenusile de ardere, metale care ajungand in atmosfera sub forma de nanoparticule au un potential ridicat de nocivitate. Deasemenea carbonul organic si anorganic prezinta un factor de risc asupra mediului sub forma de nanoparticule.

Analizele dimensionale arata ca gazele rezultate din arderea deşeurilor conţin nanoparticule. Reamintim ca aceste nanoparticule sunt doar cele care probabil au fost atasate la particulele mari, si stocate in timpul procesului mecanic de filtrare. Ele sunt, totusi, relevante in studiul nostru deoarece rezultatele indica existenta unui numar mare de nanoparticule rezultate prin arderea deseurilor. Studiul efectuat s-a concentrat in principal pe particulele cu raza <200 nm, potential daunatoare pentru sanatatea umana. Deocamdata nu s-au identificat caror categorii de substante apartin nanoparticulele identificate, aceasta fiind o activitate destinata etapei urmatoare a proiectului.

In final s-au realizat cu ajutorul colectivului condus de dl. Prof. Dr. Stefan Antohe de la Facultatea de Fizica a Universitatii Bucuresti subansamble de proba ale dispozitivului experimental, constand in electrozi de Cu cu puritate 99.99% depusi in vid pe placute de sticla Fisher sub diferite geometrii (interdigitat si simplu).

5. Diseminarea rezultatelor obtinute prin publicarea in reviste de specialitate si participarea la conferinte.

Rezultatele obtinute in cadrul celor trei etape au fost diseminate in conferinte nationale/ internationale, precum si publicate sau trimise spre publicare in reviste cotate ISI, conform listei de mai jos, utilizate si pentru referintele bibliografice din textul raportului. Pe parcursul etapei a fost actualizat permanent site-ul proiectului, aflat la adresa <u>www.nanodep.com</u>.

Participari conferinte:

[1] A. Neculae, M. Lungu, M. Bunoiu, R. Giugiulan: Electrohydro-dynamic modeling for manipulation of micro/nano particles in microfluidic systems; Physics Conference TIM 11, Timisoara, Romania, November 24-27, 2011.

[2] M. Lungu, A. Neculae, M. Bunoiu, N. Strambeanu, R. Giugiulan: Reduction of nanoparticle emission by electrohydrodynamic filtering of residual combustion gases; International Conference ANMBES 2012. Transilvania University of Brasov, Romania, May 24th-27th, 2012, Abstract Book p.107.

[3] M. Lungu, I. Malaescu, R. Giugiulan, M. Bunoiu and N. Strambeanu: Experimental investigations on the frequency dependence of the Clausius-Mossotti factor for nano/ microparticles contained in the exhausted flue gases of incinerators, the 8th General Conference of Balkan Physical Union, Constanta, Romania, July 5-7, 2012, Abstract Book p.155.

[4] M. Lungu, A. Neculae, R. Giugiulan, M. Bunoiu and A. Lungu: Effects of flow velocity upon nanoparticle distribution in microfluidic devices under dielectrophoresis; ICPAM-9, 9th International Conference on Physics of Advanced Materials, Iasi, Romania, 20-23 September 2012, Abstract Book p.105.

[5] A. Neculae, R. Giugiulan and M. Lungu: Nanoparticle manipulation by dielectrophoresis, IX Conference of the Society of Physicists of Macedonia, Ohrid, Republic of Macedonia, 20-23 September 2012.

[6] M. Lungu,, A. Neculae, M. Bunoiu, R. Giugiulan: Separation of submicron particles suspended in fluid wastes using dielectrophoresis; The Proceedings of XIII-th International Mineral Processing Symposium, Bodrum, Turkey, October 10 - 12, 2012, p.865-870.

[7] A. Neculae, R. Giugiulan, M. Bunoiu M. Lungu: Submicron particle trapping using traveling wave dielectrophoresis; TIM-12 Physics Conference, Timisoara, Romania, November 27-30, 2012.

[8] Malaescu, C.N. Marin, S. Satulu: The temperature and particle concentration influence on the complex dielectric permittivity of magnetic fluids; TIM-12 Physics Conference, Timisoara, November 27-30, 2012, Abstract Book p.118.

[9] A. Neculae, R. Giugiulan, M. Lungu and N. Strambeanu: Separation of nanoparticles from combustion gases wastes of incinerators; IMCET 2013, The 23-rd International Mining Congress and Exhibition of Turkey, Kemer-Antalya, Turcia, 16-19 April 2013.

[10] A. Neculae, M. Bunoiu, T. Marian and M. Lungu: 3D Numerical analysis of nanoparticle suspension distribution in a microfluidic device under dielectrophoresis; The 13th International Balkan Workshop on Applied Physics, Constanta, July 4-6, 2013.

[11] I. Malaescu, R. Giugiulan, M. Lungu and N. Strambeanu: The Clausius-Mossotti factor in low frequency field of the powders resulted from waste combustion; The 13th International Balkan Workshop on Applied Physics, Constanta, July 4-6, 2013.

[12] M. Lungu, R. Giugiulan, M. Bunoiu and A. Neculae: Symulation study of a 3D DEP-based microfluidic system; TIM-13 Physics Conference, Timisoara, Romania, November 21-24, 2013.

Publicatii ISI:

[13] M. Lungu, A. Neculae, M. Bunoiu, N. Strambeanu: Some considerations on the nanoparticles manipulation in fluid media using dielectrophoresis; *Romanian Journal of Physics*, Vol. 56 (5-6), p. 749-756, 2011.

[14] A. Neculae, M. Lungu, M. Bunoiu, R. Giugiulan: Electrohydro-dynamic modeling for manipulation of micro/nano particles in microfluidic systems; *American Institute of Physics Conference Proceedings* 1472, Proceedings of the physics conference TIM-11, Melville, New York, 2012, p. 155-161.

[15] A. Neculae, M. Lungu, C.G. Biris, M. Bunoiu: *Numerical analysis of nanoparticles behaviorin a microfluidic channel under dielectrophoresis*, Journal of Nanoparticle Research, Volume: 14, Issue: 1154, p.1-12, 2012.

[16] M. Lungu, A. Neculae, M. Bunoiu, R. Giugiulan: *Separation of submicron particles suspended in fluid wastes using dielectrophoresis*; The Proceedings of XIII-th International Mineral Processing Symposium, Bodrum, Turkey, October 10 - 12, 2012, p.865-870.

[17] A. Neculae, R. Giugiulan and M. Lungu: Nanoparticle manipulation by dielectrophoresis; *Physica Macedonica*, ISSN 1409-7168, vol 61, p. 39-44, 2012.

[18] A. Neculae, R. Giugiulan, M. Bunoiu and M. Lungu: Effects of flow velocity upon nanoparticle distribution in microfluidic devices under dielectrophoresis, *Romanian Reports in Physics*, vol. 2, 2014 (in press).

[19] I. Malaescu, M. Lungu, R. Giugiulan and N. Strambeanu: The Clausius-Mossotti factor in low frequency field of the powders resulted from waste combustion, *Romanian Journal of Physics* 2013 (in press).

[20] A. Neculae, R. Giugiulan, M. Bunoiu, M. Lungu: Submicron particle trapping using traveling wave dielectrophoresis; *American Institute of Physics Conference Proceedings*, Proceedings of the physics conference TIM-12, Melville, New York, 2013 (in press).

[21] M. Lungu, A. Neculae, R. Giugiulan and I. Malaescu: Assessment of flue gas filtration by entrapment of nanoparticles in a microfluidic device using dielectrophoresis, submited to *Journal of Hazardous Materials* (under review).