



ساخت و بهینه‌سازی نانوالیاف پلی آکریلونیتریل برای کاربرد در فیلتراسیون هوا

سمیه فرهنگ دهقان^۱، فریده گلبابایی^۲، بزرگمهر مداح^۳، رسول یاراحمدی^۴، اصغر صدیق زاده^۵

تاریخ پذیرش: ۹۴/۱۰/۲۷

تاریخ ویرایش: ۹۴/۰۷/۱۲

تاریخ دریافت: ۹۴/۰۳/۳۱

چکیده

زمینه و هدف: در فیلترهای نانولیفی بی‌یافت، خصوصیات ریخت‌شناسی الیاف تولیدی، قطر آن‌ها و درصد تخلخل مدیا از مهمترین مشخصه‌های فیلتراسیون در نظر گرفته می‌شود. از این رو در مطالعه حاضر بهینه‌سازی پارامترهای الکتروریسی برای رسیدن به مقادیر مطلوب مشخصه‌های فوق صورت گرفت.

روش بررسی: بدین منظور طرح آزمایشی از طریق روش رویه پاسخ تهیه شد که در آن فاکتورهای عملیاتی الکتروریسی شامل غلظت محلول، ولتاژ دستگاه و فاصله سوزن تزریق تا جمع‌آوری‌کننده به عنوان متغیرهای ورودی و پارامترهای قطر الیاف، درصد تخلخل، تعداد گره و نسبت متوسط قطر گره به قطر الیاف به عنوان متغیرهای پاسخ در نظر گرفته شدند. مطالعات ریخت‌شناسی الیاف تولیدی و تخلخل مدیاها از طریق پردازش تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی تعیین گردید.

یافته‌ها: حداکثر غلظت مورد بررسی محلول باعث ایجاد بهترین ریخت‌شناسی و حداکثر قطر الیاف گردید. بالاترین ضریب همبستگی بین قطر الیاف و غلظت محلول دیده شد ($r = 0.73$, $P < 0.05$). قویترین همبستگی نیز بین درصد تخلخل و ولتاژ دستگاه دیده شد ($r = 0.39$, $P > 0.05$). رابطه سائز گره با پارامترهای غلظت محلول ($r = -0.6$) و فاصله الکتروریسی ($r = 0.56$) از نظر آماری معنی‌دار تعیین شد. تعداد گره نیز، بویژه با افزایش غلظت محلول کاهش می‌یافت.

نتیجه‌گیری: در مجموع، روش رویه پاسخ به خوبی توانست ارتباط بین متغیرهای ورودی و خروجی را تعیین نماید. ضرایب رگرسیون بدست آمده در مدل‌های ریاضی، به خوبی ارزش داده‌های تجربی حاصله را بیان کرد. آزمایشات تکمیلی اعتبارسنجی نشان داد مقادیر تجربی بدست آمده توافق خوبی با مقادیر پیش‌بینی شده دارند.

کلیدواژه‌ها: فیلتر نانولیفی، بهینه‌سازی، روش سطح پاسخ، قطر الیاف، تخلخل، گره

۱- مقدمه

پاک‌سازی هوا بسیار مورد استقبال قرار گرفته‌اند. درجه شایستگی این فیلترها عمدتاً با فاکتور کیفیت (معادله ۱) بیان می‌شود که ترکیبی از پارامترهای کارایی جمع‌آوری (نسبت غلظت ذره قبل و بعد از فیلتر) و مقاومت فیلتر در برابر عبور هوا (افت فشار) می‌باشد.

$$q_F = \frac{-\ln P}{\Delta p} \quad (1)$$

q_F فاکتور کیفیت فیلتر، P میزان نفوذ ذره (کسری از ذرات که از فیلتر عبور می‌کنند که در واقع همان یک منهای کارایی می‌باشد) و Δp افت فشار هوا هنگام عبور از فیلتر می‌باشد (۱). همان‌طور که مشخص است یک فیلتر با فاکتور کیفیت بالا از کارایی

امروزه، فیلتراسیون هوا توسط نانوالیاف توجه بسیاری را به خود جلب کرده است که این می‌تواند ناشی از سطح جمع‌آوری زیاد و مقاومت پایین آن‌ها در برابر عبور هوا باشد (۱). فیلتراسیون از متداول‌ترین روش‌های پاک‌سازی هوا محسوب می‌شود که کاربردهای فراوانی در صنایع دارد از جمله: وسایل حفاظت تنفسی، پاک‌سازی جریان‌های احتراقی، پردازش مواد هسته‌ای و حذف ذرات در اتاق‌های پاک (۲). فیلترهای نانو لیفی به‌ویژه نوع بی‌یافت آن به‌علت ساختار ساده، قیمت پایین، ساختارهای حفره‌ای با نفوذپذیری بالا، اندازه کوچک حفرات، در فرآیندهای

۱- دکتری، گروه بهداشت حرفه‌ای، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران، تهران، ایران، استادیار گروه بهداشت حرفه‌ای، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی، تهران ایران.

۲- (نویسنده مسئول) استاد، گروه بهداشت حرفه‌ای، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران، تهران، ایران. fglbabaei@sina.tums.ac.ir

۲- دانشیار، گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه امام حسین، تهران، ایران.

۴- مرکز تحقیقات بهداشت کار و گروه بهداشت حرفه‌ای، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران.

۵- مرکز تحقیقات گداحت هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی، تهران، ایران.

جمع‌آوری زیاد و افت فشار کم برخوردار است. از طرفی کارایی جمع‌آوری بالا از طریق قطر الیاف کوچک‌تر و دانسیته فشردگی بالاتر الیاف (نسبت حجم فضای اشغال شده بوسیله الیاف فیلتر به کل حجم فیلتر است که همان یک منهای تخلخل می‌باشد)، و افت فشار پایین از طریق دانسیته فشردگی پایین (تخلخل بالاتر)، و قطر بزرگ‌تر الیاف محقق می‌شود. بنابراین یافتن نقطه بهینه برای ایجاد تعادل مناسب بین افت فشار فیلتر و کارایی آن جهت کسب فاکتور کیفیت قابل قبول ضروری است (۳).

در سال‌های اخیر، الکتروریسی خود را به عنوان یک روش موفق برای تولید الیاف فوق‌العاده ریز معرفی کرده است. این فرآیند در نتیجه بکارگیری یک میدان الکتریکی برای یک محلول پلیمری با هدایت الکتریکی بالا می‌باشد که طی آن جت پلیمری شکل می‌گیرد. محلول الکتروریسی پس از خروج از یک نازل باریک (کاپیلاری - نوک سوزن) تحت تأثیر میدان الکتریکی به سمت یک صفحه جمع‌آوری کشیده می‌شود. به علت تعادل ایجاد شده بین کشش سطحی محلول و نیروهای الکتریکی وارد بر آن، محلول پلیمری بعد از کشیده شدن به شکل یک مخروط (Taylor Cone) درمی‌آید. جت پلیمری تا زمانی که توان کشسانی آن اجازه دهد از مخروط خارج می‌شود. در این حالت بعد از تبخیر حلال، الیافی با قطر کنترل شده تولید می‌شوند (۲).

پارامترهای عملیاتی فرآیند الکتروریسی (مانند ولتاژ دستگاه، دبی سیال، فاصله نوک سوزن تا صفحه جمع‌آوری کننده)، ویژگی‌های محلول (مانند غلظت، وزن مولکولی، ویسکوزیته و کشش سطحی، و شرایط محیطی (مانند دما، فشار و رطوبت هوا) می‌تواند بر خواص ریخت‌شناسی الیاف حاصله بسیار تأثیرگذار باشد (۴). در این بین، سه فاکتور غلظت محلول الکتروریسی، ولتاژ کاربردی دستگاه و فاصله نوک سوزن تا صفحه جمع‌آوری الیاف، در مطالعات مختلف به عنوان پارامترهای حیاتی در فرایند الکتروریسی مطرح شده‌اند (۵). در بیشتر مطالعات، اصلی‌ترین نقش

به غلظت محلول اختصاص یافته، به‌طوری‌که افزایش غلظت محلول باعث افزایش قطر الیاف تولیدی، کاهش درصد حضور قطرات و گره و افزایش ارتقاء کیفیت صفحات تولیدی می‌گردد (۶). محلول‌های غلیظ‌تر دارای ویسکوزیته بالاتری بوده، که این موضوع منجر به مقاومت بیشتر محلول در برابر ازدیاد طول و نازک شدن لیف می‌شود (۷). برخی مطالعات نشان داده‌اند ولتاژ کاربردی دستگاه اثر ناچیزی بر مشخصات ریخت‌شناسی الیاف مثل قطر آن‌ها دارد (۸)، در عوض مطالعات دیگری گزارش کرده‌اند که ولتاژهای بالاتر باعث تشکیل الیاف قطورتر می‌شود (۹) و دیده شده است ولتاژهای بیشتر می‌تواند نیروی دافعه الکترواستاتیک در جت شارژ شده را افزایش دهند، بنابراین باعث باریک شدن قطر لیف گردند (۱۰). بنابراین اثر ولتاژ دستگاه بسته به شرایط مختلف الکتروریسی مثل نوع و ویژگی‌های محلول و نرخ تزریق آن می‌تواند متفاوت باشد. در خصوص فاصله نوک سوزن تا صفحه جمع‌آوری کننده، رابطه منفی با قطر الیاف گزارش شده است، به‌طوری‌که افزایش فاصله باعث بی‌ثباتی خمشی الیاف شده، بنابراین الیاف کشیده و قطر لیف کاهش می‌یابد (۵).

هدف از مطالعه حاضر تولید و بهینه‌سازی الیاف پلی‌آکریلونیتریل (PAN) برای استفاده به عنوان فیلترمدیا است. بدین منظور بهینه‌سازی فاکتورهای الکتروریسی تأثیرگذاری مانند رژیم غلظتی محلول الکتروریسی، ولتاژ دستگاه الکتروریسی، و فاصله سوزن تا صفحه جمع‌آوری کننده جهت دستیابی به الیافی با قطر و درصد تخلخل دلخواه (به عنوان پارامترهای تأثیرگذار بر راندمان جمع‌آوری و افت فشار فیلتر) و مدیاهای مورفولوژی (ریخت‌شناسی) مناسب مثل توزیع یکنواخت لیف، عدم ایجاد برجستگی و دانه در لیف (Bead)، مد نظر قرار گرفت. در میان بسیاری از پلیمرهای آلی که قابلیت تولید نانوالیاف در فرآیند الکتروریسی را دارند، پلی‌آکریلونیتریل (PAN) به عنوان یک پلیمر همه‌کاره به علت ویژگی‌های فیزیکی خوب آن مثل آب‌گریز نبودن و غیرقابل حل بودن در

فراهم می‌آورند. روش سطح پاسخ (RSM Response, Surface Methodology)، مجموعه‌ای از روش‌های آماری و ریاضیات کاربردی برای ایجاد مدل‌های تجربی می‌باشد. هدف در طرح‌های سطح پاسخ، بهینه‌سازی پاسخ (متغیر خروجی) است که متأثر از چندین متغیر مستقل (متغیرهای ورودی) می‌باشد. روش‌های سطح پاسخ می‌توانند بسته به کاربردها در طرح آزمایش به روش‌های متفاوتی طرح شوند از جمله طرح مرکزی مرکب (Combined Central Design, CCD) که یکی از مهم‌ترین این طرح‌هاست که بر اساس مدل مرتبه دوم در روش سطح پاسخ عمل می‌کند. در این نوع طراحی برای حالتی که دو متغیر ورودی وجود دارد، یک طرح پایه 2^k (k برابر با تعداد متغیرها) در نظر گرفته می‌شود. به این طرح یک نقطه مرکزی و چهار نقطه محوری برای آزمون تناسب و برآورد اثرهای درجه دوم مدل سطح پاسخ اضافه می‌شود که نتیجه آن یک طرح مرکزی مرکب خواهد بود (۱۲).

در طرح آزمایش آماده شده، فاکتورهای عملیاتی الکتروریسی شامل غلظت محلول، ولتاژ دستگاه و فاصله سوزن تزریق تا جمع‌آوری کننده به عنوان متغیرهای ورودی و پارامتر تخلخل مدیا، قطر الیاف، نسبت متوسط قطر گره به متوسط قطر الیاف و تعداد گره به عنوان متغیر پاسخ مد نظر قرار گرفت.

۲-۱- بهینه‌سازی پارامترهای الکتروریسی

بهینه‌سازی پارامترهای الکتروریسی با تهیه طرح آزمایش و تجزیه و تحلیل نتایج حاصله توسط نرم افزار Design Expert انجام شد. طرح آزمایش تهیه شده، ۱۵ نوبت (Run) آزمایشی را پیشنهاد نمود که طی اجرای آن‌ها پارامترهای الکتروریسی در مقادیر مشخصی تنظیم می‌شدند (جدول ۱). قبل از اجرای آزمایشات پیشنهادی، ابتدا محدوده عملیاتی برای هر متغیر مورد بررسی در الکتروریسی تعیین شد. این مقادیر مرزی از طریق مطالعات مقدماتی به منظور شکل‌گیری الیاف پیوسته و بدون شکستگی الیاف و تشکیل قطرات و همچنین بر اساس شرایط عملیاتی

بسیاری از حلال‌ها، قیمت مناسب و سهولت الکتروریسی شدنش و کاربردهای بالقوه‌ی آن در زمینه‌های مختلف علمی از جمله فیلتراسیون، بکارگرفته شد (۲ و ۶). در مطالعات مختلف عملکرد فیلتراسیون PAN بررسی شده و کارایی جمع‌آوری مشابه و حتی بیشتر از فیلترهای هپا یا فیلترهایی با عملکرد بالا (High-Efficiency Particulate Air) برای آن بدست آمده است (۱۱). در این مطالعه به بررسی کمی رابطه‌ی بین پارامترهای ورودی کنترل‌پذیر (غلظت محلول، ولتاژ دستگاه، و فاصله سوزن تا صفحه جمع‌آوری) و متغیرهای پاسخ (قطر الیاف، درصد تخلخل، نسبت متوسط قطر گره به متوسط قطر الیاف و تعداد گره)، ارائه مدل ریاضی موجود چند جمله‌ای بین متغیرها به منظور پیش‌بینی متغیر پاسخ، تجزیه و تحلیل اثرات مستقیم و تداخل بین پارامترها از راه نمودارهای دو بعدی و سه بعدی و در آخر ارائه شرایط بهینه متغیرهای آزمایش به منظور بیشینه یا کمینه کردن مقدار متغیر پاسخ برای هر محلول الکتروریسی پرداخته می‌شود.

۲- روش بررسی

نانوالیاف پلی آکریلونیتریل توسط فرآیند الکتروریسی تولید شدند. به منظور بهینه‌سازی نانوالیاف الکتروریسی شده، طرح آزمایشی توسط نرم افزار Design Expert-DX (Minneapolis) از طریق روش سطح پاسخ (RSM) بر اساس طرح مرکزی مرکب (CCD) آماده گردید. امروزه به منظور سهولت بخشیدن و دست‌یابی به شرایط بهینه آزمایشگاهی و بررسی و ارزیابی نتایج حاصله، روشهای طراحی آزمایش با کمک نرم افزار توسعه یافته است که از این طریق میتوان بیشترین اطلاعات را از کمترین تعداد آزمایش انجام شده بدست آورد. روشهای طراحی آزمایش، امکان بررسی عوامل متعدد مؤثر بر آزمایش، شناسایی عوامل اصلی برای بهبود فرایند، انجام بهینه‌سازی‌های عددی، انجام طراحی‌های سه بعدی برای تجسم سطوح پاسخ را

۲-۱-۱- مواد مصرفی و آماده سازی محلول‌های الکتروریسی

پلیمر پلی آکریلونیتریل (MW = 80000 g/mol)
از شرکت پلی آکریل اصفهان و حلال ۹۹٪ N,N-
دی متیل فراماید (DMF) (MW= 73.1g/mol; CAS#:68-12-2) از شرکت مرک آلمان خریداری
گردید. غلظت محلول PAN/DMF از ۸ تا ۱۶ درصد
وزنی تهیه شد و محلول توسط هم‌زن مغناطیسی
صفحه-داغ (Heidolph: MR Hei-Standard) به
منظور به‌دست‌آوردن محلول همگن، در دمای اتاق به
مدت ۱۲-۲۴ ساعت هم زده شد (۱۵).

۲-۱-۲- تولید الیاف از طریق الکتروریسی
از طریق فرآیند الکتروریسی و مطابق طرح آزمایش،
نانوالیاف PAN با دستگاه تجاری الکتروریسی (Lab
Scale Electrospinning Unit، شرکت فناوران
نانو مقیاس، ایران) در شرایط ذیل تولید شدند.
غلظت محلول: ۸-۱۶ درصد وزنی، ولتاژ کاربردی:
۱۰ - ۲۰ کیلوولت، فاصله سوزن تا صفحه
جمع‌آوری کننده: ۱۰-۱۵ سانتیمتر، دما: ۳۰ درجه
سانتیگراد، مدت زمان: ۵ دقیقه، صفحه جمع‌آوری:
پوشیده شده با فویل آلومینیوم، نرخ تزریق: ۱
میلی لیتر بر ساعت؛ سرنگ: ۵ میلی لیتر، قطر سوزن:
گیج ۱۸ (قطر خارجی: ۱/۲ میلی متر). برای خشک
کردن نمونه های جمع‌آوری شده قبل از
تصویربرداری، نمونه ها به مدت ۲ ساعت در خلاء در
دمای اتاق نگه داشته شدند.

٢-١-٣- تعيين قطر الباف

با کمک تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM, Hitachi S 4160) و نرم افزار پردازش تصاویر Microstructure Measurement (Ferdowsy University, Iran) مطالعات ریخت‌شناسی فیلترها و قطر الیاف تولیدی صورت گرفت. قبل از تصویر برداری، نمونه ها به منظور افزایش رسانایی در یک محفظه ی خلاء به وسیله یک

غلظت محلول الکتروریسی در بالاترین مقدار خود در دامنه مورد بررسی قرار دارد. نتایج مطالعات گذشته حاکی از آن است که با افزایش غلظت محلول الکتروریسی شاهد حضور قطرات و گره‌های کمتری در الیاف و در نتیجه بهبود کیفیت آنها خواهیم بود. ایجاد گره (بید) معمولاً ناشی از تجمع مولکول‌های حلال می‌باشد و در غلظت‌های بالاتر و در نتیجه افزایش در هم تنیدگی بیشتر زنجیره‌های پلیمری، مولکول‌های حلال در میان زنجیره‌های درهم تنیده پخش شده و تمایلاشان برای جمع شدگی کمتر می‌گردد (۱۹). همچنین در غلظت‌های بالای محلول، میزان تحرک پذیری زنجیره‌ها کمتر بوده و در نتیجه کشش و پخش شدگی جت محلول پلیمری کاهش می‌یابد، و نتیجه آن تولید الیافی با قطر بیشتر خواهد بود (۲۰). نتایج مطالعه حاضر که حداکثر غلظت محلول (۱۶ درصد وزنی) باعث ایجاد بهترین ریخت‌شناسی و حداکثر قطر الیاف شده، با یافته‌های مطالعات قبلی همخوانی دارد (۲۲-۲۰). در شماره آزمایشات ۵ و ۸-۱۰ کیفیت الیاف تولیدی ضعیف بوده، به‌طوری‌که در آزمایش شماره ۵ گره‌ها عمده محصول تولیدی می‌باشند و به نظر می‌رسد الکترواسپری به جای الکتروریسی اتفاق افتاده باشد (۲۳). در ترکیب آزمایشات مذکور، عمدتاً از حدود متوسط دامنه‌های پارامترهای الکتروریسی مورد بررسی استفاده شده است. طبیعی است در این شماره آزمایشات، حداکثر تعداد تقریبی گره و اندازه‌های بزرگ تر نسبت قطر گره به قطر الیاف نیز دیده شود (جدول ۱). غلظت پلیمر از آنجایی که مستقیماً با ویسکوزیته محلول مرتبط است، یکی از مهمترین فاکتورهای موثر بر سایز و تعداد گره محسوب می‌شود. در غلظت‌های پایین، تعداد گره‌ها و میکروسفیرهای (Microsphere) بیشتری در محصولات الکتروریسی شده دیده می‌شود و در غلظت‌های خیلی پایین الکترواسپری رخ می‌دهد. افزایش غلظت منجر به کاهش تعداد و سایز گره شده و در برخی شرایط باعث حذف کامل گره‌ها می‌گردد (۲۴). نتایج مطالعه حاضر نیز موید همین مطلب است.

۱-۶- تجزیه و تحلیل آماری نتایج
تجزیه و تحلیل آماری نتایج با استفاده از Design-Expert و تجزیه و تحلیل واریانس (ANOVA) انجام شد. ارائه مدل ریاضی چند جمله‌ای برای متغیرهای مورد بررسی الکتروریسی به منظور پیش‌بینی متغیرهای پاسخ مد نظر، تعیین شرایط بهینه متغیرهای آزمایش جهت بیشینه یا کمینه کردن مقدار متغیرهای پاسخ، و تجزیه و تحلیل اثرات مستقیم و تداخل بین پارامترها از راه نمودارهای دو بعدی و سه بعدی با کمک این نرم افزار صورت گرفت.

۳- نتایج و بحث

طرح آزمایش شامل ۱۵ نوبت آزمایشی در جدول ۱ نشان داده شده است، که در آن پارامترهای الکتروریسی شامل غلظت محلول، ولتاژ دستگاه و فاصله سوزن تزریق تا صفحه جمع‌آوری کننده به عنوان متغیرهای ورودی و پارامترهای قطر الیاف، درصد تخلخل و نسبت متوسط قطر گره به متوسط قطر الیاف به عنوان متغیر پاسخ در نظر گرفته شده اند. در ادامه به بررسی خصوصیات ریخت‌شناسی الیاف تولیدی، تعیین اثرات انفرادی و تعاملی پارامترهای الکتروریسی بر متغیرهای پاسخ و ارائه شرایط بهینه الکتروریسی برای رسیدن به مقادیر دلخواه از متغیرهای مورد بررسی پرداخته شده است.

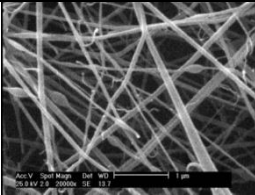
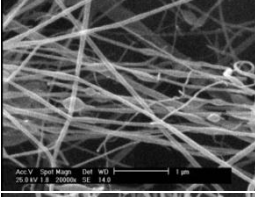
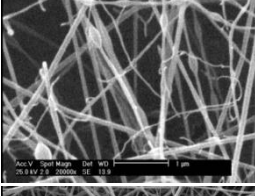
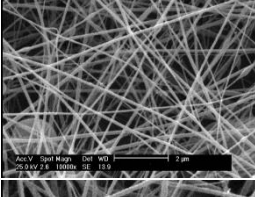
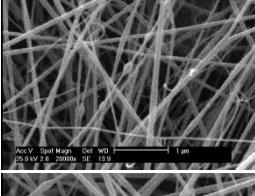
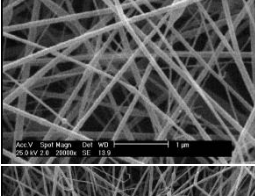
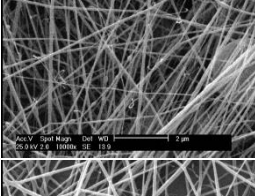
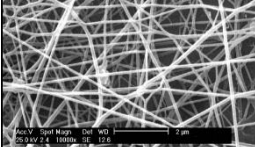
۳-۱- ریخت‌شناسی

طبق تصاویر مندرج در جدول ۱، بهترین ویژگی‌های ریخت‌شناسی (شامل توزیع یکنواخت لیف، عدم ایجاد برجستگی و دانه در لیف و عدم وجود شاخه‌های اضافه) بدست آمده برای الیاف PAN متعلق به شماره آزمایش ۱ (غلظت محلول: ۱۶ درصد وزنی، ولتاژ دستگاه: ۲۰ کیلوولت، فاصله نوک سوزن تا صفحه: ۱۰ سانتی‌متر) و ۲ (غلظت: ۱۶ درصد وزنی، ولتاژ: ۱۰ کیلوولت، فاصله: ۱۵ سانتی‌متر) می‌باشد. حداکثر میانگین قطر الیاف نیز برای این ترکیب آزمایشات بدست آمده است. در این نوبت‌های آزمایشی،

جدول ۱- طرح آزمایش و نتایج ارزیابی متغیرهای پاسخ

شماره آزمایش	متغیرهای الکتریکی				متغیرهای پاسخ		تصاویر SEM (مقیاس تصاویر: ۲۰۰۰۰ - ۱۰۰۰۰ X تصویر: ۶۲۵ X)
	غلظت (در گستره ۸-۱۶ wt%)	ولتاژ (در گستره ۱۰-۲۰ kV)	فاصله (در گستره ۱۰-۱۵ cm)	متوسط قطر الیاف (nm)	تخلخل (%)	متوسط قطر گره به متوسط قطر الیاف	
۱۶	۲۰	۱۰	۱۵۴/۹۹	۵۱/۲۸	۱۰/۶۱	۲	
۱۶	۱۰	۱۵	۱۴۱/۷۷	۴۸/۶۵	۱۶/۷۵	۷	
۸	۲۰	۱۵	۷۷/۳۰	۴۳/۷	۴۹/۱۲	۲۵۰	
۸	۱۰	۱۰	۹۰/۳۶	۳۶/۵۵	۱۷/۳۶	۴۲۰	
۹/۶	۱۵	۱۲/۵	۷۱/۶	۵۱/۵۹	۴۳/۲۳	۱۰۰۰<	
۱۴/۴	۱۵	۱۲/۵	۱۳۱/۸۲	۳۸/۹۶	۲۱	۲۵۵	
۱۲	۱۲	۱۲/۵	۱۰۵/۶۶	۳۵/۰۱	۱۳/۸۱	۳۰۰	

ادامه جدول ۱- طرح آزمایش و نتایج ارزیابی متغیرهای پاسخ

	۵۱۰	۳۹/۴۳	۵۱/۱۳	۶۳/۳۳	۱۲/۵	۱۸	۱۲
	۴۵۰	۱۵/۹۱	۳۳/۶۵	۱۱۶/۸۲	۱۱	۱۵	۱۲
	۴۵۰	۳۳/۴۱	۴۹/۳۴	۶۸/۶۱	۱۴	۱۵	۱۲
	۳۹۰	۲۷/۴	۴۸/۹۸	۸۲/۵۹	۱۲/۵	۱۵	۱۲
	۳۸۰	۲۶/۱۷	۴۶/۲۹	۱۰۴/۵۸	۱۲/۵	۱۵	۱۲
	۴۰۰	۳۷/۰۳	۴۸/۹۸	۸۳/۶۳	۱۲/۵	۱۵	۱۲
	۳۹۰	۲۵/۰۷	۴۵/۲۹	۱۰۳/۵۸	۱۲/۵	۱۵	۱۲
	۴۰۰	۲۶/۵۰	۴۸/۹۸	۸۵/۳۳	۱۲/۵	۱۵	۱۲

۳-۲- اثرات انفرادی و تعاملی پارامترهای الکتروریسی

اثر انفرادی پارامترهای الکتروریسی بر متغیرهای پاسخ هنگامی که دو پارامتر دیگر ثابت فرض می‌شود و همچنین میزان همبستگی متغیرهای پاسخ با یکدیگر در جدول ۲ نشان داده شده است. در بین پارامترهای الکتروریسی، بالاترین ضریب همبستگی بین قطر الیاف و غلظت محلول دیده شد و این رابطه از نظر آماری معنی دار تعیین گردید ($r=0.73$, $p<0.05$). مطالعات بسیاری به بیان این مطلب پرداخته‌اند که قطر الیاف به شدت تحت تأثیر غلظت محلول الکتروریسی قرار دارد و در غلظت‌های بالاتر به علت افزایش ویسکوزیته محلول و کاهش کشیدگی جت پلیمر، قطر الیاف افزایش می‌یابد (۱۸-۲۳). رابطه بین قطر الیاف و فاصله الکتروریسی و ولتاژ دستگاه معکوس و از نظر آماری معنی دار نبود. در واقع، ولتاژهای بالاتر به علت افزایش نیروی دافعه الکترواستاتیک در جت شارژشده، می‌تواند سبب باریک تر شدن قطر لیف شود (۱۰). همچنین، با افزایش فاصله الکتروریسی فرصت تبخیر بیشتری به حلال داده می‌شود، از اینرو قطر الیاف نیز کاهش می‌یابد (۲۴). رابطه ضعیف و مستقیمی بین پارامترهای الکتروریسی و درصد تخلخل مدیاها دست آمد و قویترین همبستگی نیز بین ولتاژ دستگاه و درصد تخلخل دیده شد ($r=0.39$, $p>0.05$). در مطالعه زیاباری و همکاران گزارش شده است با افزایش ولتاژ دستگاه در غلظت محلول ثابت، درصد تخلخل نانوالیاف پلی وینیل الکل افزایش می‌یابد (۲۳). رابطه سائز گره با پارامترهای غلظت محلول ($r=-0.06$) و فاصله الکتروریسی ($r=0.056$) از نظر آماری معنی دار تعیین شد به طوریکه با افزایش غلظت محلول و کاهش فاصله ابعاد گره نیز بویژه با افزایش غلظت محلول کاهش می‌یافت. نتایج حاصله موید این مطلب است که غلظت محلول الکتروریسی از مهمترین پارامترهای تعیین کننده کیفیت الیاف می‌باشد (۲۶-۲۰). فونگ (Fong) و همکاران مهمترین فاکتورهای

موثر بر تشکیل الیاف حاوی گره را ویسکوالاستیسه محلول، چگالی بار الکتریکی و کشش سطحی محلول دانسته‌اند. ویسکوزیته و چگالی بار خالص بالاتر و کشش سطحی کمتر باعث ایجاد الیاف فاقد گره می‌شوند. غلظت محلول عامل موثر بر ویسکوزیته، نوع پلیمر و حلال عاملین تأثیرگذار بر کشش سطحی و ولتاژ کاربردی دستگاه عامل تعیین کننده چگالی بار الکتریکی می‌باشد (۲۷).

مطابق جدول ۲، رابطه بین قطر الیاف با درصد تخلخل مدیا ($r=-0.23$)، سائز ($r=-0.73$) و تعداد گره ($r=-0.53$) معکوس می‌باشد و با افزایش قطر الیاف شاهد کاهش درصد تخلخل، کاهش سائز و تعداد گره در الیاف خواهیم بود که این یافته با نتایج سایر مطالعات مرتبط همخوانی دارد (۲۴، ۲۷، ۲۸). باقرزاده و همکاران یافتند که در غلظت‌های پایین‌تر محلول الکتروریسی پلی کپرولاکتون، قطر الیاف کاهش، حجم کلی لیف افزایش و بنابراین درصد تخلخل کاهش می‌یابد (۲۸).

در متون آمده است که درصد تخلخل می‌تواند تحت تأثیر قطر الیاف بوده، به‌طوری‌که تعداد فضاهای خالی یک فیلتر لیفی تابعی از عکس توان چهار قطر الیاف آن باشد (۲۹).

بررسی اثر تعاملی پارامترهای الکتروریسی بر متغیرهای پاسخ، با تجزیه و تحلیل ANOVA و روش تناسب مدل صورت گرفت و پارامترهایی که از نظر آماری معنی دار نبودند در مدل وارد نشدند. مدل ریاضی موجود بین متغیرهای الکتروریسی به منظور پیش‌بینی متغیرهای پاسخ در جدول ۳ آورده شده است. یک مدل درجه دوم برای رابطه بین قطر الیاف PAN و پارامترهای مورد بررسی الکتروریسی و همچنین یک مدل دو عاملی برای نوع رابطه میزان تخلخل و متغیرهای ورودی یافت شد. در معادله قطر مشخص است که با افزایش غلظت و ولتاژ (با ضریب تأثیر بیشتر غلظت) قطر الیاف افزایش خواهد یافت. همان‌طور که از این معادله مشخص است فاکتورهای A^2 ، B^2 ، C^2 و BC از نظر آماری معنی دار نبوده بنابراین از مدل

جدول ۲- ضریب همبستگی بین پارامترهای الکترورسی و متغیرهای پاسخ

متغیرهای پاسخ				پارامتر الکترورسی
تعداد گره	متوسط قطر گره به متوسط قطر الیاف	تخلخل	قطر	
-۰/۵۱	-۰/۶*	۰/۲۴	۰/۷۳*	غلظت محلول
-۰/۰۲	۰/۴	۰/۳۹	-۰/۱۱	ولتاژ دستگاه
-۰/۰۶	۰/۵۶*	۰/۲۸	-۰/۲۵	فاصله الکترورسی
				متغیرهای پاسخ
-۰/۵۳*	-۰/۷۳*	-۰/۲۳	-	قطر
-۰/۲۷	۰/۳۹	-	-۰/۲۳	تخلخل
۰/۰۳	-	۰/۳۹	-۰/۷۳*	متوسط قطر گره به متوسط قطر الیاف
-	۰/۰۳	-۰/۲۷	-۰/۵۳*	تعداد گره

*رابطه در سطح ۰/۰۵ معنی دار است

جدول ۳- مدل ریاضی موجود بین متغیرهای الکترورسی به منظور پیش‌بینی متغیرهای پاسخ

معادله	نوع مدل	متغیر پاسخ
$\text{Diameter} = +30.58 + 32.98 A^* + 13.45 B^{**} - 25.66 C^{***} - 1.68 AB - 3.53 AC$	درجه دوم	قطر (nm)
$\text{Porosity} = +11.7 - 25.32 A + 10.96 B + 10.57 C + 0.59 AB + 1.09 AC - 1.23 BC$	دو عاملی	تخلخل (%)
$\text{ABD/AFD} = -124.4 - 40.15 A + 24.5 B + 28.7 C + 0.25 AB + 0.66 AC - 0.7 BC + 0.97 A^2 - 0.54 B^2 - 0.81 C^2$	درجه دوم	متوسط قطر گره به متوسط قطر الیاف
$\text{Bead number} = -16554 - 1654.9 A - 69.78 BC + 45.47 A^2$	درجه دوم	تعداد گره

* A-Concentration, ** B-Voltage, *** C-Distance

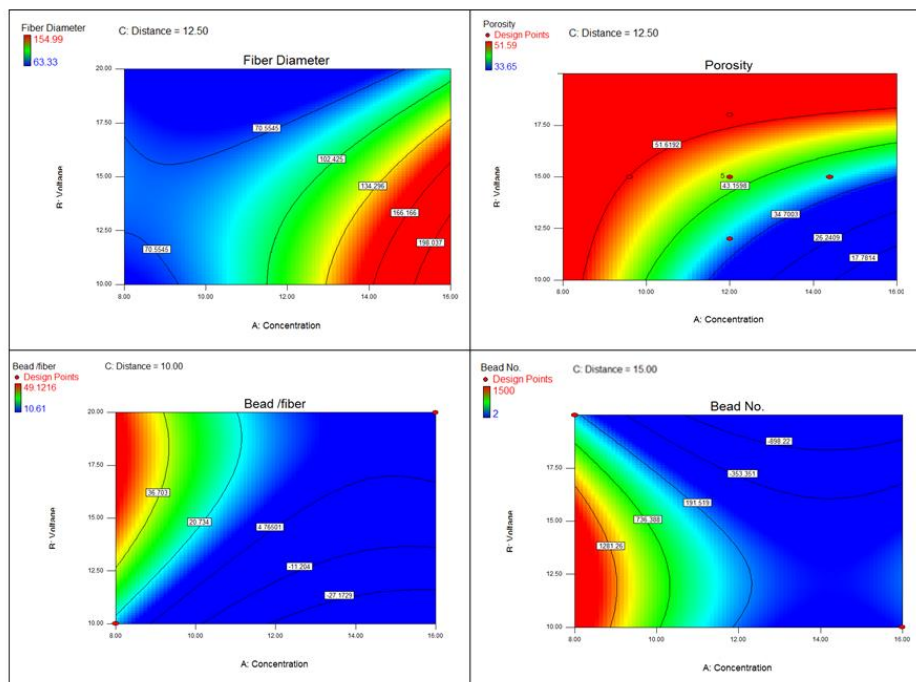
ارتباط ریاضی بین آنها و مطابق با مدل های ریاضی ارائه شده می‌باشند. به طور مثال در فاصله ثابت، با افزایش غلظت محلول و کاهش ولتاژ، سایز گره نسبت به قطر الیاف کاهش می‌یابد و یا با کاهش غلظت محلول و افزایش ولتاژ، درصد تخلخل مدیا افزایش می‌یابد. وقتی مقدار ولتاژ در عدد مشخصی ثابت می‌شود نیز با افزایش غلظت و کاهش فاصله قطر الیاف و سایز گره کاهش می‌یابد.

۳-۳- تعیین شرایط بهینه

نرم افزار Design-Expert قادر به پیش‌بینی ترکیبات بهینه از متغیرهای ورودی برای رسیدن به

حذف گردیده اند. در روش تناسب مدل، زمانی که P-value مدل کمتر از ۰/۰۵ باشد نشانگر آن است که با ضریب اطمینان ۹۵٪، پارامترهای مدل از نظر آماری معنی دار است و مقادیر Lack of fit وقتی از نظر آماری معنی دار نباشد، نشان‌دهنده اعتبار مدل ایجاد شده است (۳۰).

شکل ۱ نمونه ای از طرح (پلات) کنترولی می‌باشد از تاثیر همزمان دو پارامتر الکترورسی (غلظت و ولتاژ) بر متغیرهای پاسخ، وقتی پارامتر سوم (فاصله الکترورسی) در مقدار مشخصی ثابت در نظر گرفته می‌شود. شکل پلات های کنترولی برگرفته از نوع



شکل ۱- پلات کنتوری از تاثیر همزمان غلظت و ولتاژ در فاصله الکتروریسی معین بر متغیرهای پاسخ

جدول ۴- برخی از شرایط بهینه در سطوح مختلف نیاز

نام	هدف	حد بالا	حد پایین	وزن	درجه اهمیت
غلظت محلول (wt %)	حداکثر	۸	۱۶	۱	۳
ولتاژ دستگاه (kV)	در گستره	۱۰	۲۰	۱	۳
فاصله الکتروریسی (cm)	در گستره	۱۰	۱۵	۱	۳
قطر (nm)	در گستره	۶۳/۳۳	۱۵۴/۹۹	۱	۳
تخلخل (%)	در گستره	۳۳/۶۵	۵۱/۵۹	۱	۳
متوسط قطر گره به	حداقل	۱۰/۶۱	۴۹/۱۲	۱	۳
متوسط قطر الیاف (ABD/AFD)	حداقل	۲	۱۵۰۰	۱	۳

راه حل های پیشنهادی

شماره	غلظت محلول (wt %)	ولتاژ دستگاه (kV)	فاصله الکتروریسی (cm)	قطر (nm)	تخلخل (%)	ABD / AFD	تعداد گره	درجه مطلوبیت
۱	۱۶	۲۰	۱۰	۱۵۴/۸۲	۵۱/۴۶	۱۰/۶۲	۲۱/۵۸	۰/۹۹
۲	۱۵/۹۵	۱۹/۹۹	۱۰	۱۵۳/۵	۵۱/۵۷	۱۰/۵	۱۸/۹۶	۰/۹۹
۳	۱۵/۸۹	۱۹/۹۸	۱۰	۱۵۱/۹۹	۵۱/۵۹	۱۰/۳۲	۱۵/۷۵	۰/۹۹

تخلخل تأثیر دوسویه بر فاکتور کیفیت فیلتر دارند در حالت "در گستره" و مقادیر تعداد و سایز گره در حالت حداقل تنظیم شدند. درجه مطلوبیت یک تابع عینی است و گستره‌ای از ۰ تا ۱ را دارا است. اعتبار سنجی

حداکثر، حداقل و یا مقدار خاصی از متغیر پاسخ می‌باشد. جدول ۴ برخی از راه حل های پیشنهادی در سطوح مختلف مورد نیاز از متغیرهای پاسخ را ارائه می‌دهد. از آنجایی که مقادیر قطر الیاف و درصد

تقدیر و تشکر

این مقاله حاصل بخشی از طرح تحقیقاتی مصوب دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی تهران (کد: ۹۲-۰۱-۲۷-۲۱۸۰) می‌باشد که با حمایت دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی تهران اجرا شده است. نویسندگان بر خود لازم می‌دارند از حمایت‌های مالی مجتمع صنعتی بعثت و از همکاری صمیمانه شرکت فن‌آوران نانومقیاس در انجام امور الکتروریسی و همچنین راهنمایی‌های ارزشمند آقای دکتر حسن زاده در زمینه پردازش تصویر تقدیر و تشکر به عمل آورند.

منابع

1. Zhang Q, Welch J, Park H, Wu C-Y, Sigmund W, Marijnissen J. Improvement in nanofiber filtration by multiple thin layers of nanofiber mats. *Journal of Aerosol Science*. 2010;41(2):230-6.
2. Yun KM, Hogan Jr CJ, Matsubayashi Y, Kawabe M, Iskandar F, Okuyama K. Nanoparticle filtration by electrospun polymer fibers. *Chemical Engineering Science*. 2007;62(17):4751-9.
3. Huang S-H, Chen C-W, Kuo Y-M, Lai C-Y, McKay R, Chen C-C. Factors affecting filter penetration and quality factor of particulate respirators. *Aerosol and Air Quality Research*. 2013;13(1):162-71.
4. Han W, Nurwaha D, Li C, Wang X. Free surface electrospun fibers: The combined effect of processing parameters. *Polymer Engineering & Science*. 2013.
5. Gu S, Ren J, Vancso G. Process optimization and empirical modeling for electrospun polyacrylonitrile (PAN) nanofiber precursor of carbon nanofibers. *European polymer journal*. 2005;41(11):2559-68.
6. Nataraj S.K., Yang K.S., Aminabhavi T.M. Polyacrylonitrile-based nanofibers—A state-of-the-art review. *Progress in Polymer Science*. 2012;37:487-513.
7. Li Z, Wang C. Effects of Working Parameters on Electrospinning. *One-Dimensional nanostructures*: Springer 2013:15-

این معادلات رگراسیونی، توسط انجام سه نوبت تصادفی مطابق شرایط بهینه پیشنهادی صورت گرفت. نتایج آزمایشات اعتبارسنجی به مقادیر پیش بینی شده نرم افزار کاملاً نزدیک (درصد تغییرات کمتر از ۱٪) بود.

۴- نتیجه گیری

این مطالعه با هدف ساخت و بهینه‌سازی نانوالیاف پلی آکریلونیتریل برای کاربرد در فیلتراسیون هوا صورت گرفت. از آنجایی که پارامترهای کیفیت و قطر الیاف و درصد تخلخل فیلتر عوامل موثر در عملیات فیلتراسیون محسوب می‌شوند، بهینه‌سازی سه پارامتر حیاتی فرآیند الکتروریسی (غلظت محلول، ولتاژ دستگاه و فاصله نوک سوزن تا صفحه جمع‌آوری کننده) برای رسیدن به مقادیر مطلوب از متغیرهای پاسخ صورت گرفت. طبق نتایج حاصله، غلظت محلول الکتروریسی اصلی ترین عامل تأثیر گذار بر پارامتر کیفیت (تعداد و سایز گره) و قطر الیاف تعیین شد و ولتاژ کاربردی نیز عامل اصلی تغییر در درصد تخلخل الیاف تولیدی از فرآیند الکتروریسی مشخص گردید. رابطه تعاملی پارامترهای الکتروریسی بر متغیرهای پاسخ توسط مدل‌های ریاضی و رسم پلات‌های کنتوری به نمایش گذاشته شد. ضرایب رگراسیونی بدست آمده در مدل‌های ریاضی، به خوبی ارزش داده‌های تجربی حاصله را نشان داد. روش RSM به خوبی توانست ارتباط بین متغیرهای ورودی و خروجی را تعیین نماید و آزمایشات تکمیلی اعتبارسنجی نشان داد مقادیر تجربی بدست

آمده توافق خوبی با مقادیر پیش بینی شده دارند. به طور کلی برای رسیدن به شرایط و مقادیر دلخواه از مشخصه‌های فیلتر، انتخاب درست شرایط عملیاتی فرایند الکتروریسی می‌تواند بسیار تعیین کننده باشد. امید است نتایج حاصله از این مدل‌های تجربی ارائه شده، راهنمایی برای بهینه‌سازی شرایط الکتروریسی جهت تولید فیلترهای نانولیفی با فاکتور کیفیت مناسب باشد.

- experimental parameters on the morphology of electrospun Nylon 6 fibres. *International Journal of Basic & Applied Sciences*. 2010;10(6):70-8.
19. Pilehrood MK, Heikkilä P, Harlin A. Preparation of carbon nanotube embedded in polyacrylonitrile (pan) nanofibre composites by electrospinning process. *AUTEX Research Journal*. 2012;12(1):1-6.
20. Hasanazadeh M, Hadavi Moghadam B, Moghadam Abatari M, Haghi A. On the production optimization of polyacrylonitrile electrospun nanofiber. *Bulg Chem Commun*. 2013;45:178-90.
21. Wong S. An investigation of process parameters to optimize the fiber diameter of electrospun vascular scaffolds through experimental design. 2010.
22. Amiraliyan N, Nouri M, Kish MH. Electrospinning of silk nanofibers. I. An investigation of nanofiber morphology and process optimization using response surface methodology. *Fibers and Polymers*. 2009;10(2):167-76.
23. Liu J, Kumar S. Microscopic polymer cups by electrospinning. *Polymer*. 2005;46(10):3211-4.
24. Liu Y, He JH, Yu Jy, Zeng Hm. Controlling numbers and sizes of beads in electrospun nanofibers. *Polymer International*. 2008;57(4):632-6.
25. Ziabari M, Mottaghitalab V, Haghi AK. Evaluation of electrospun nanofiber pore structure parameters. *Korean Journal of Chemical Engineering*. 2008;25(4):923-32.
26. Ramakrishna S, Fujihara K, Teo W-E, Lim T-C, Ma Z. An introduction to electrospinning and nanofibers: World Scientific 2005.
27. Fong H, Chun I, Reneker D. Beaded nanofibers formed during electrospinning. *Polymer*. 1999;40(16):4585-92.
28. Bagherzadeh R, Latifi M, Najar SS, Kong L. Three-dimensional pore structure analysis of Nano/Microfibrous scaffolds using confocal laser scanning microscopy. *Journal of Biomedical Materials Research Part A*. 2013;101(3):765-74.
29. Purchas D, Sutherland K. *Handbook of filter media*: Elsevier 2002.
30. Ramakrishna G, Susmita M. Application of response surface methodology for optimization of Cr (III) and Cr (VI) adsorption on commercial activated carbons. *Research journal of Chemical Sciences*. 2012;2(2):40-8.
8. Reneker DH, Chun I. Nanometre diameter fibres of polymer, produced by electrospinning. *Nanotechnology*. 1996;7(3):216.
9. Teo W-E, Inai R, Ramakrishna S. Technological advances in electrospinning of nanofibers. *Science and Technology of Advanced Materials*. 2011;12(1):013002.
10. Zhang C, Yuan X, Wu L, Han Y, Sheng J. Study on morphology of electrospun poly (vinyl alcohol) mats. *European polymer journal*. 2005;41(3):423-32.
11. Barhate R, Ramakrishna S. Nanofibrous filtering media: filtration problems and solutions from tiny materials. *Journal of membrane science*. 2007;296(1):1-8.
12. Tavanaie M A, Shushtari A M, Goharpey F, Moghaddam M B. Optimization and Prediction of Mechanical Properties of Polypropylene/Poly(butylene terephthalate) Blend Fibers Using Response Surface Methodology. *Journal of Textile Science and Technology*. 2012;2(2): 104-13.
13. Dehghan SF, Golbabaie F, Maddah B, Latifi M, Pezeshk H, Hasanazadeh M. Effect of single-walled carbon nanotubes on the porosity of nonwoven nanofiber filter media. *Nanomaterials*. 2015;22(7): 75-85. [In Persian]
14. Dehghan SF, Golbabaie F, Maddah B, Yarahmadi R, Sedigh-Zadeh A. Experimental Investigations on electrospun mat production: for use in high-performance air filters. *International Journal of Occupational Hygiene*. 2015;7(3): 110-118.
15. Nasouri K, Bahrambeygi H, Rabbi A, Shoushtari AM, Kaflou A K. Modeling and optimization of electrospun PAN nanofiber diameter using response surface methodology and artificial neural networks. *Journal of Applied Polymer Science*. 2012;126(1):127-35.
16. Deshpande S, Kulkarni A, Sampath S, Herman H. Application of image analysis for characterization of porosity in thermal spray coatings and correlation with small angle neutron scattering. *Surface and coatings technology*. 2004;187(1):6-16.
17. Ghasemi-Mobarakeh L, Semnani D, Morshed M. A novel method for porosity measurement of various surface layers of nanofibers mat using image analysis for tissue engineering applications. *Journal of applied polymer science*. 2007;106(4):2536-42.
18. Chowdhury M, Stylios G. Effect of

Fabrication and Optimization of Electrospun Polyacrylonitrile Nanofiber for Application in Air Filtration

Somayeh Farhang Dehghan¹, Farideh Golbabaie², Bozorgmehr Maddah³, Rasoul Yarahmadi⁴, Asghar Sadigh Zadeh⁵

Received: 2015/06/21

Revised: 2015/10/04

Accepted: 2016/01/17

Abstract

Background and aims: In nanofibrous filters, morphological properties, diameter of fibers and porosity percent of media are the most filtration characteristics. Therefore, the present study aimed to optimize the electrospinning parameters for reaching to the desired values of the mentioned filter characteristics.

Methods: For this purpose, a study design was prepared using response surface methodology (RSM), in which electrospinning factors such as solution concentration, applied voltage and electrospinning distance were considered input variables and the fiber diameter, porosity, bead number and average bead diameter to average fiber diameter (ABD/AFD) ratio were considered the output variables. Morphological features of fibers and porosity of media were done through image processing approach of Scanning Emission Microscopy (SEM) images.

Results: Maximum concentration in assessed range can provide the best morphology and also the maximum diameter. The highest correlation coefficient has been seen between fiber diameter and solution concentration ($p < 0.05$, $r = 0.73$). Porosity and applied voltage represent the strongest relationship ($p > 0.05$, $r = 0.39$). There was the significant relationship between both concentration and electrospinning distance and bead size ($r = -1.6$, $r = 0.56$, respectively). Bead number was decreased specially with increase in concentration.

Conclusion: Totally, RSM could well determine the relationship between input and response variables. High regression coefficient in mathematical models indicated the importance of the experimental values. The validation test shown the experimental data are in good agreement with the predicted ones.

Key words: Nanofibrous Filter, Optimization, Response Surface Methodology, Fiber Diameter, Porosity, Bead

1. PhD, Department of Occupational Health, School of Public Health, Tehran University of Medical Sciences, Tehran, Iran. Assistant professor, Department of Occupational Health, School of Public Health, Shahid Beheshti University of Medical Sciences, Tehran, Iran.

2. Professor, Department of Occupational Health, School of Public Health, Tehran University of Medical Sciences, Tehran, Iran. fgolbabaie@sina.tums.ac.ir

3. Associate Professor, Department of Chemistry, Imam Hossein University, Tehran, Iran.

4. Occupational Health Research Center and Department of Occupational Health, School of Public Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran.

5. Nuclear Fusion Research Center, Atomic Energy Organization, Tehran, Iran.