

Методика устойчивой модификации смачиваемости стенок каналов микрофлюидных чипов из полидиметилсилоксана

© А.С. Якимов, В.Д. Мешкова, А.В. Минаков

Сибирский федеральный университет,
660041 Красноярск, Россия
e-mail: Redel-vd@yandex.ru

Поступило в Редакцию 15 июля 2025 г.

В окончательной редакции 25 мая 2026 г.

Принято к публикации 2 июня 2026 г.

Смачиваемость внутренней поверхности пористого тела определяет характер многофазных потоков при течении через него жидкостей. Поэтому при создании микрофлюидных моделей пористых сред необходимо контролировать не только топологию поровых каналов, но и управлять смачиваемостью их стенок. Разработана методика гидрофилизации стенок каналов микрофлюидных чипов с помощью их предварительной обработки диэлектрическим барьерным разрядом и финальной обработки поливиниловым спиртом. Предложенная методика позволила получать устойчивую во времени гидрофилизацию поверхности микрофлюидных чипов как в случае вытеснения нефти водой, так и наоборот. Это является чрезвычайно важным обстоятельством для дальнейшего расширения применения микрофлюидных технологий в нефтегазовой индустрии. Установлено, что при такой обработке каналов микрочипов получается устойчивая гидрофилизированная поверхность, которая сохраняет свои свойства при прокачивании углеводородных жидкостей в течение нескольких суток. Так, в частности, было показано, что после обработки загерметизированного микрофлюидного чипа краевой угол смачивания на границе полидиметилсилоксана–вода–нефть уменьшался с 125° до 25° .

Ключевые слова: изготовление микрофлюидных чипов, модификация смачиваемости, диэлектрический барьерный разряд, поливиниловый спирт, полидиметилсилоксан.

DOI: 10.61011/JTF.2026.11.63787.182-25

Введение

В нефтегазовой отрасли микрофлюидные методы нашли особое применение в исследованиях течений многофазных потоков, а также для изучения физико-химических процессов, протекающих в микроканальных структурах [1–3]. Микрофлюидные чипы позволяют имитировать сложные природные пористые структуры, а также воссоздавать структуру нефтематеринской породы, что позволяет визуализировать реальное поведение течений в сложных системах и изучить процессы фильтрации и вытеснения углеводородов. В настоящее время для создания микрофлюидного чипа используются различные материалы, такие как кварц, стекло, кремний, а также более дешевые в производстве материалы: полиметилметакрилат (ПММА) и полидиметилсилоксан (ПДМС).

При создании микрофлюидных моделей пористых тел в задачах нефтевытеснения принципиальным вопросом является создание условий смачивания стенок, близких к реальным горным породам, которые, как правило, являются гидрофобными. Характер смачиваемости оказывают ключевое влияние на эффективность вытеснения нефти из горных пород [4]. Поэтому при создании микрофлюидных чипов-двойников горных пород очень важно научиться управлять смачиваемостью стенок их каналов. При этом поиски способов управления сма-

чиваемостью в микрофлюидных чипах ведутся достаточно давно [5–15]. Одним из известных способов изменения смачиваемости исходно гидрофобного чипа из ПДМС является полимеризация адсорбированной на стенке полиакриловой кислоты с помощью обработки ультрафиолетовым излучением [8]. В результате удалось добиться существенной гидрофилизации поверхности в местах УФ обработки. В дальнейшем этот метод был развит авторами в работе [2]. Привитая фотополимеризация стала широко применяться для локального изменения смачиваемости стенок каналов микрочипов из ПДМС, который совместим со многими функциональными мономерами. При этом управление смачиваемости проводится не только для микроканалов, выполненных из ПДМС. Авторы работы [9] провели модификацию чипов, изготовленных травлением кремниевой подложки, путем нанесения тонкого слоя оксида кремния. В результате были созданы прозрачные микромодели стекло–кремний–стекло, позволяющие в отличие от ПДМС проводить эксперименты при высоких температурах и давлении.

Другим известным способом обработки поверхности для изменения смачиваемости является плазменная обработка стенок каналов. Работы в этом направлении также начаты более 20 лет назад [10] и продолжают развиваться. Так, в работе [11] было предложено устройство для поджига диэлектрического барьерного

разряда в капиллярах микрофлюидных чипов, состоящее из медных электродов, между которыми зажимается чип. Вокруг электродов имеются диэлектрические уплотнители, уменьшающие вероятность пробоя вокруг чипа. Недостатком является требование к достаточно большой ширине полей у чипа, что делает не рациональным использование материалов и площади мастер-формы. Для создания плазмы, помимо диэлектрического барьерного разряда [12], применяется коронный разряд [13]. Помимо этого, на характеристики поверхности влияет форма поджигающего плазму сигнала [14]. В настоящее время в целом установлены механизмы влияния плазменной обработки ПДМС. Показано, что плазменная обработка увеличивает количество полярных групп на поверхности, что делает ее более химически активной и увеличивает смачиваемость водой [15]. ПДМС является гидрофобным эластомером благодаря обилию неполярных метильных групп. При обработке в электрической плазме метильные группы либо отрываются с образованием на их месте силанольных групп, либо теряют атом водорода и превращаются в полярные метанольные группы. При длительной обработке плотность полярных групп на поверхности возрастает, взаимодействуя между собой, они могут образовывать вицинальные комплексы, что приводит к поворотам и изгибам полимерных нитей ПДМС. В результате полярные группы оказываются в толще материала, а не на поверхности. Таким образом, существует минимальное значение угла смачивания для ПДМС, зависящее от параметров полимерной сети ПДМС и его вязкости. К сожалению, из-за реакционной активности образующихся полярных групп и подвижности поверхности ПДМС плазменная гидрофилизация ПДМС не является долговременной. Поэтому для повышения устойчивости гидрофильных свойств на обработанную плазмой поверхность адсорбируют слой пленкообразующего водорастворимого полимера. Так, в работах [16,17] для этих целей используется поливиниловый спирт. Показано, что данная модификация поверхности сохраняет свои свойства на протяжении всего эксперимента при работе с буферными растворами с различным рН и не повреждает биологические молекулы. Проверка устойчивости данной модификации к другим химически более агрессивным жидкостям (в том числе к нефти и нефтесодержащим флюидам) в течение длительного времени является актуальной задачей. Настоящая работа посвящена описанию создания одного из вариантов универсальной методики управления смачиваемостью в микроканальных чипах для задач нефтевытеснения. Как показывают результаты приведенного ниже исследования, предложенная методика позволяет получать устойчивую во времени гидрофилизацию поверхности каналов микрофлюидных чипов как в случае вытеснения нефти водой, так и наоборот. Это является чрезвычайно важным обстоятельством для дальнейшего расширения применения микрофлюидных технологий в нефтегазовой индустрии.

1. Подходы и методы

Ранее нашим коллективом была разработана и изготовлена установка с диэлектрическим барьерным разрядом, который поджигался в вакуумной камере с образцом [18]. Показано, что для увеличения гидрофильных свойств ПДМС его достаточно обрабатывать диэлектрическим разрядом в течение 2 min. При этом угол смачивания на воздухе уменьшится со 125 до 25°, что свидетельствует об эффективности плазменной обработки для увеличения гидрофильности поверхности. Далее попробовали обработать уже загерметизированный чип при уменьшенном расстоянии между электродами. Было видно, что горение плазмы происходило по периметру чипа в области между электродами. Однако на смачиваемость каналов это не повлияло, а значит в каналах чипа плазма не горела. Вероятно, это было вызвано тем, что материал чипа (ПДМС) имел коэффициент диэлектрической проницаемости примерно в 2.7 раза выше, чем у воздуха, что приводило к тому, что в каналах был слишком малый градиент электрического поля, недостаточный для поджига диэлектрического барьерного разряда. Обработка образца происходит эффективно только на его внешней поверхности. При этом внутренняя поверхность капилляров обрабатывается только в непосредственной близости к отверстиям, что также наблюдалось другими исследователями [19]. Таким образом, потребовалось создать установку и разработать метод для поджига плазмы внутри капилляров чипа. Для этого предварительно поместили металлические трубочки во входные и выходные отверстия чипа так, чтобы создалось герметичное соединение. После чего внутри чипа было создано разрежение (20 kPa) и на одну из подключенных металлических трубочек подавалось напряжение от аппарата де'Арсоналя (КАРАТ ДЕ-212), а другую — заземлили. Аппарат де'Арсоналя обеспечивает возможность плавной регулировки напряжения на входе в интервале от 2 до 15 kV и частотой тока 110 kHz. Это приводило к горению плазмы внутри капилляров чипа, что показано на рис. 1. Однако, как показали дальнейшие исследования, внутренние поверхности, обработанного таким образом чипа, не приобрели гидрофильные свойства, а напротив стали гидрофобнее. К тому же были обнаружены значительные повреждения стенок капилляров чипа и различимы продукты горения. Таким образом, искровой разряд обладает слишком высокой температурой для гидрофилизации микрофлюидных чипов. Для снижения температуры горения плазмы необходимо было разорвать электрическую цепь слоем диэлектрика и вместо искрового разряда получить в каналах чипа диэлектрический барьерный разряд.

Поэтому один из электродов был выведен наружу микрофлюидного чипа и покрыт дополнительным слоем диэлектрика (рис. 2, а) во избежание пробоев вокруг чипа и потерь, связанных с горением коронного разряда. При этом сам корпус микрофлюидного чипа также являлся еще одним слоем диэлектрика. Было обнаружено,

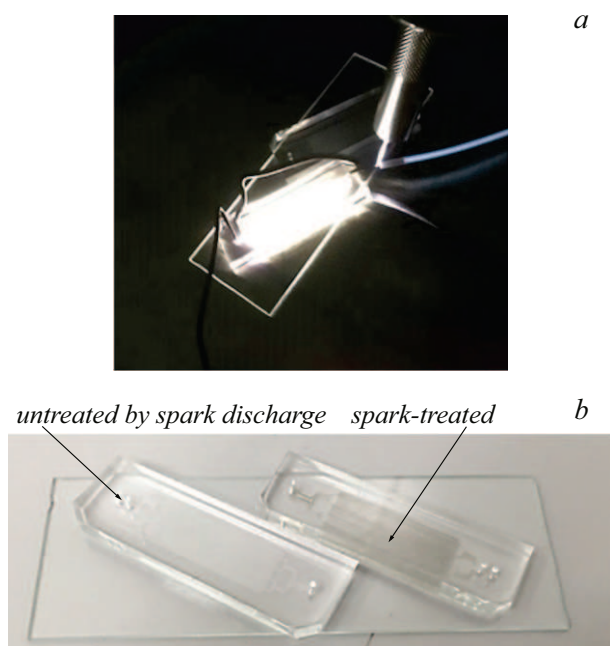


Рис. 1. Горение искрового разряда в каналах чипа (а); образцы микрофлюидных чипов (b).

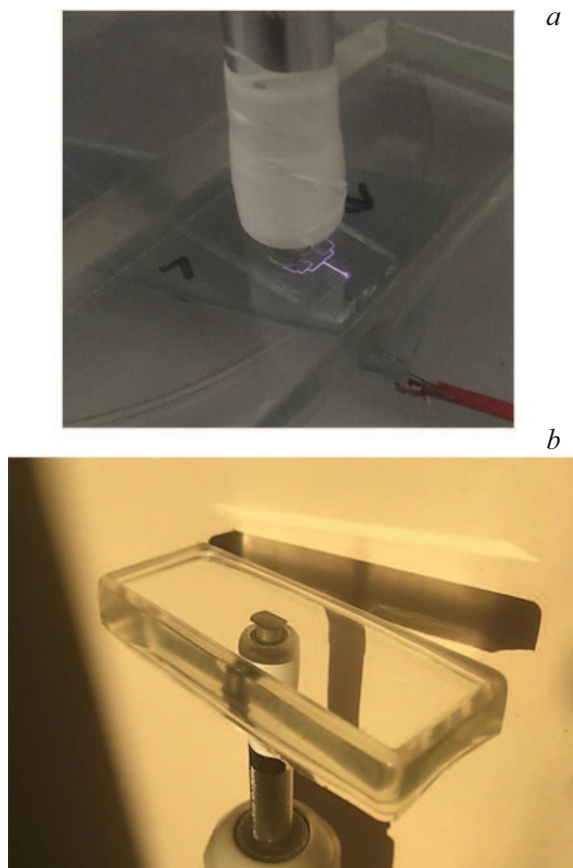


Рис. 2. Фото изолированного анода (а) и горение диэлектрического барьерного разряда в каналах чипа (b).

что в данном исполнении горение плазмы внутри чипа менее интенсивно по сравнению с искровым разрядом (рис. 2, b) и пережигание поверхности не происходит за время обработки в течение 2 min. При этом откачка воздуха из капиллярной сети чипов не требуется, что является преимуществом, так как плазмохимические процессы протекают быстрее при более высоких давлениях и большом количестве молекул кислорода [20].

2. Описание плазменной установки

В ходе многочисленных методических экспериментов была окончательно определена конструкция плазменной установки. Анод был изготовлен из стального стержня диаметром 6 mm, который был подключен к аппарату д'Арсонваля Карат ДЕ-212. Для изготовления изолирующего слоя (см. блок-схему на рис. 3) данный стержень укладывался торцом на поверхность предметного стекла толщиной 1 mm так, чтобы ось стержня была перпендикулярна поверхности стекла. Для исключения искровых пробоев вокруг чипа, а также для устранения коронного разряда вокруг анода и связанных с этим потерь энергии, конструкция заливалась эпоксидной смолой так, чтобы нижняя поверхность стеклянной пластинки осталась открытой, а верхняя, на которой установлен анод, вместе с нижней частью анода, оказалась полностью залита дегазированной эпоксидной смолой, толщиной не менее 9 mm, так чтобы часть резьбы анода оказалась доступной для подключения источника напряжения. При подаче напряжения на анод в каналах чипа между анодом и катодом загорался диэлектрический барьерный разряд, под действием которого происходила модификация по-

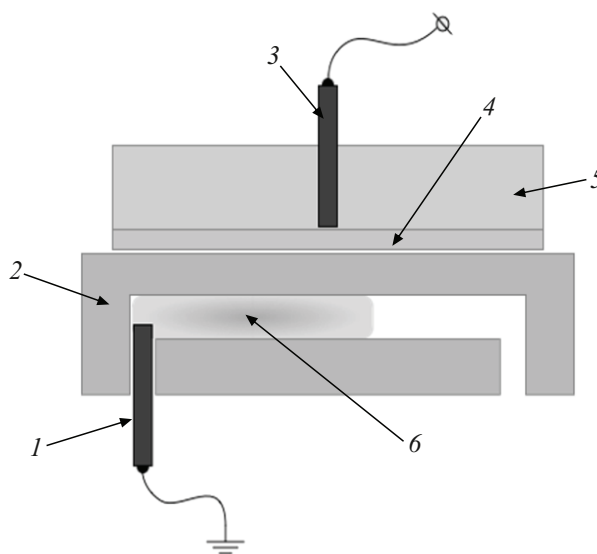


Рис. 3. Блок-схема плазменной установки: 1 — заземленный катод-коннектор, 2 — чип из ПДМС, 3 — изолированный анод, 4 — предметное стекло, 5 — эпоксидная смола, 6 — диэлектрический барьерный разряд в капиллярах чипа между анодом и катодом.

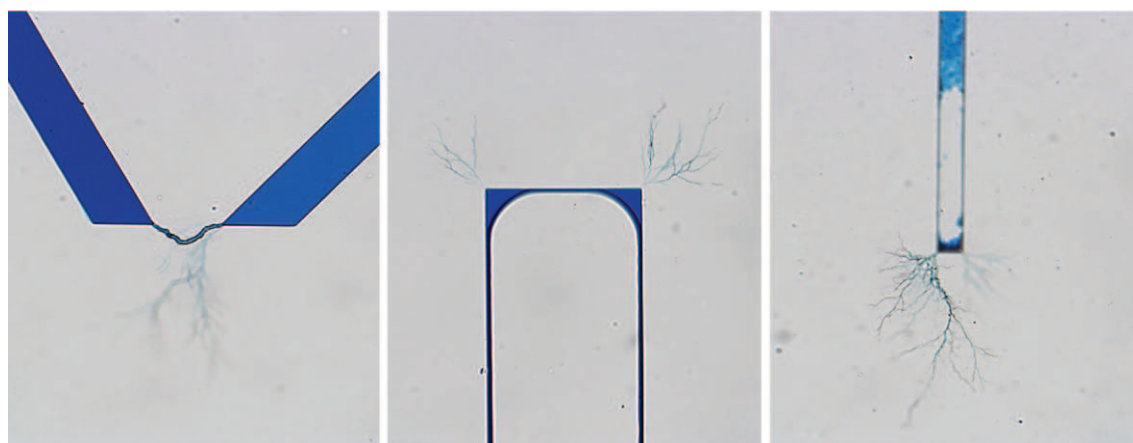


Рис. 4. Повреждения капилляров при использовании напряжения 15 kV при обработке плазмой. Видны фигуры Лихтенберга и пробой между близко расположенными капиллярами. На фотографиях капилляры заполнены водой, подкрашенной синим красителем Кумасси.

верхности каналов чипа. Таким образом, основными элементами установки и материалами являются: катод 1 из нержавеющей стали марки AISI 304, которые также выполняют роль коннекторов для подключения к чипам трубочек; микрофлюидный чип 2 из ПДМС или другого диэлектрического материала; анод 3 из стали марки Ст3, изолированный со стороны чипа предметным стеклом 4, и по бокам эпоксидной смолой 5. Катод заземляется, и при подаче напряжения на изолированный анод в капиллярах чипа поджигается диэлектрический барьерный разряд 6. Начало горения плазмы наблюдалось при напряжении выше 5 kV. Однако при таких минимальных значениях напряжения плазма горела не равномерно и не стабильно. В то же время было замечено, что при слишком высоком напряжении (15 kV) происходят пробои внутри чипа, что приводит к образованию фигур Лихтенберга на углах капилляров, представляющих собой тонкие каналы (рис. 4). Поэтому при использовании представленной выше конструкции следует подбирать напряжение, при котором плазма уже горит, но пробоев внутри чипа не происходит. Таким образом, в качестве рабочего напряжения во всех дальнейших экспериментах было выбрано значение 10 kV. Стоит отметить, что в отличие от повреждения материала при горении искрового разряда в чипе фигуры Лихтенберга заполняются водой, что свидетельствует об их гидрофильности.

3. Апробация установки

С помощью данной установки был обработан микрофлюидный чип с микроканалами шириной $80\text{ }\mu\text{m}$, глубиной $40\text{ }\mu\text{m}$ и длиной 3 см. Для этого катод поочередно подключался к каждому из двух отверстий и происходила обработка по 120 с плазмой каналов чипа. При этом контролировалась интенсивность горения плазмы во избежание участков перегрева. После обработки

плазмой микрофлюидный чип был заполнен водой, и затем вода вытеснялась нефтью. На рис. 5 представлены микрофотографии границы раздела между водой и нефтью в капиллярах микрофлюидного чипа, обработанного предварительно плазмой и необработанного сразу после начала эксперимента и по истечению двух суток после закачки. Значение краевого угла определялось по фотографиям с помощью электронного транспорта в стандартном графическом редакторе. Значения угла вычислялось осреднением по четырем независимым фотографиям мениска в канале. Погрешность измерения угла не превышала 3° . В результате было показано, что после гидрофилизации поверхности канала краевой угол смачивания ПДМС–вода–нефть со стороны воды уменьшался со 125 до 25° . Изменения краевого угла для гидрофобного и гидрофильного случая по прошествии двух суток с начала эксперимента не превысило трех градусов, что говорит об устойчивости модификации.

4. Устойчивость поверхности к нефти и эффект первичного смачивания

Были выполнены экспериментальные исследования с использованием товарной нефти, вязкость которой составляла $4.32\text{ mPa}\cdot\text{s}$, плотность — 803 kg/m^3 . Проведенные эксперименты показали, что смачиваемость микрофлюидных чипов существенно зависит от того, какой жидкостью каналы были смочены сразу после плазменной обработки. Так, например, если поверхность после плазменной обработки сначала заполнить нефтью и потом ее вытеснять водой, то угол смачивания уже будет более 90° , а если наоборот, то менее 30° (рис. 6, а). Таким образом, помимо плазменной активации, ключевое значение имеет полярность жидкости, которой поверхность смачивается впервые. Для проверки данной гипотезы были изготовлены 4 пластины из ПДМС (Редалид 184 ООО „Остек“) толщиной 2 mm, размерами

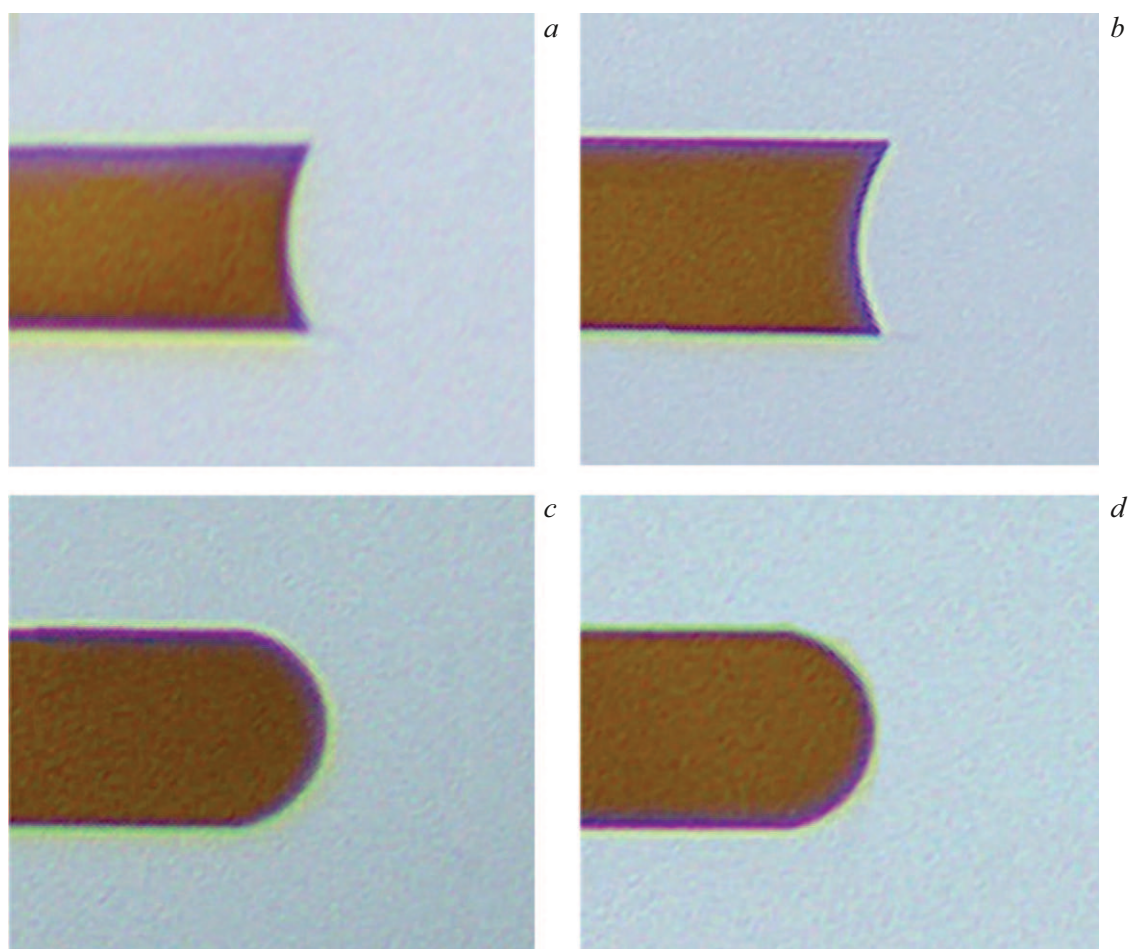


Рис. 5. Течение (слева-направо) нефти в микрофлюидном чипе, заполненном водой для предварительно необработанного канала в начальный момент времени (*a*) и по прошествии двух суток (*b*), а также для предварительно обработанного канала в начальный момент (*c*) и по прошествии двух суток (*d*).

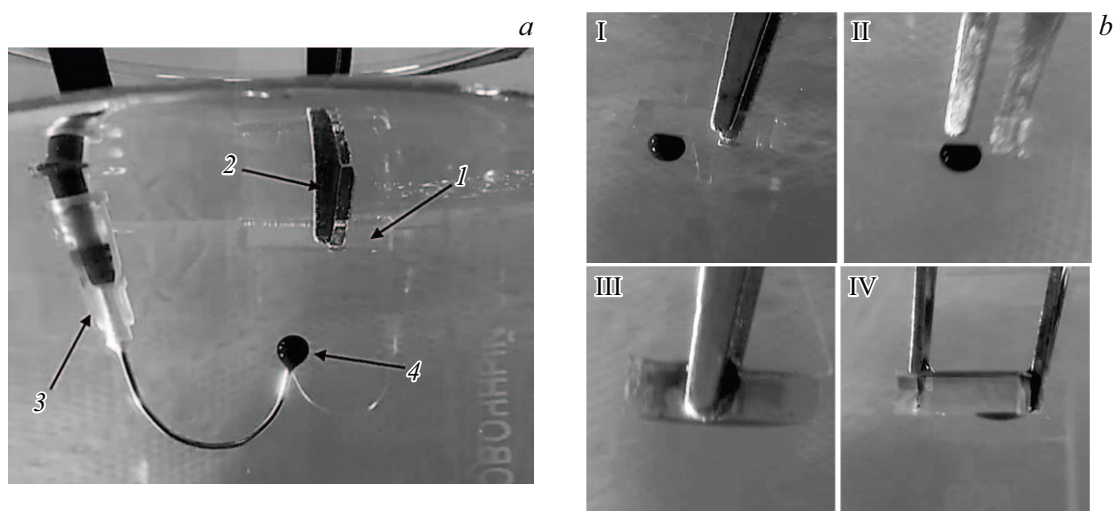


Рис. 6. Смачивание нефтью пластин из ПДМС после плазменной обработки с различными вариантами первичного смачивания. Нанесение капли нефти на образец в водной среде (*a*), где 1 — образец, 2 — пинцет, 3 — шприц с изогнутой иглой, 4 — капля нефти; примеры рассматриваемых образцов, смоченных каплей нефти (*b*), где I — плазма и вода; II — плазма, вода, масло; (III — плазма и масло; IV — контроль (без обработки).

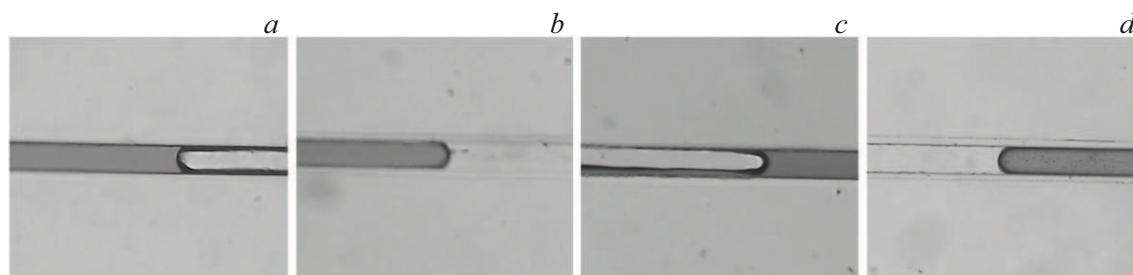


Рис. 7. Граница раздела фаз нефть–вода в канале микрофлюидного чипа из ПДМС (течение слева–направо): *a* — без обработки: чип заполнен водой, вытесняется нефтью; *b* — чип обработан диэлектрическим барьерным разрядом и смочен водой: вытесняется нефтью; *c* — чип обработан диэлектрическим барьерным разрядом и смочен нефтью: вытесняется водой; *d* — чип обработан диэлектрическим барьерным разрядом и поливиниловым спиртом: заполнен нефтью, вытесняется водой.

~ 1.5 × 1.5 см. Пластины изготавливались заливкой на поверхность ПММА слоя ПДМС и дальнейшем нарезании ножом. Далее пластинки из ПДМС подверглись различным алгоритмам обработки:

I. Обработка плазмой 3 min, вымачивание в воде 3 min.

II. Обработка плазмой 3 min, вымачивание в воде 3 min, вымачивание в силиконовом масле ПМС-200 3 min.

III. Обработка плазмой 3 min, вымачивание в силиконовом масле ПМС-200 3 min.

IV. Контроль без обработки плазмой и вымачивания.

Изготовленные образцы были помещены в воду, и под ними формировалась капля нефти с помощью изогнутой иглы на шприце. При этом капля отрывалась и всплывала, упиралась в образец и смачивала его (рис. 6, *a*). После производилось фотографирование капли, и по снимку оценивался контактный угол смачивания. Фотографии образцов, смоченные каплей нефти, представлены на рис. 6, *b*.

Анализ результатов показал, что плазменная обработка ПДМС совместно с последующим вымачиванием в воде дает устойчивую гидрофильную поверхность, свойство которой не теряется даже после контакта с неполярной жидкостью. Если первичное смачивание произвести силиконовым маслом, то эффект гидрофилизации от плазменной обработки не наблюдается. Это обстоятельство является принципиально важным, поскольку во многих микрофлюидных экспериментах для задач негАЗОВОГО дела представляет интерес процесс вытеснения нефти водной фазой. Поэтому создание гидрофильной поверхности для стенок, изначально смоченных углеводородной фазой, является актуальным.

5. Обработка поливиниловым спиртом

Для решения этой проблемы была разработана методика устойчивой плазменной обработки каналов микрофлюидных чипов. Как показано выше, активированная плазмой поверхность ПДМС является супергидрофильной при условии первичного смачивания полярной жидкостью (водой). Такая поверхность может быть легко

покрыта водорастворимыми соединениями в силу очень хорошей смачиваемости. Для этих целей в нашей работе использовался поливиниловый спирт [19,20], который растворим в воде. В результате удалось создать устойчивое покрытие в каналах чипа из ПДМС, предварительно обработанного плазмой, и подтверждена его эффективность даже в условиях, когда нефть вытеснялась водой. Для этого плазменная обработка проводилась по 120 s с каждой стороны чипа. После чего чип заполнялся 1 %-ным раствором поливинилового спирта и выдерживался в воде 20 min. Поливиниловый спирт откачивался насосом. Чип сушился при температуре 65 °С в течение 20 min. Операция плазменной обработки, выдержки в поливиниловом спирте и сушки повторялась трижды. На рис. 7 показана форма мениска на границе раздела нефть–вода в микроканале шириной 80 μm и глубиной 40 μm при различных вариантах обработки и вытеснения. Как видно, необработанная плазмой поверхность изначально является гидрофобной (рис. 7, *a*). После обработки и первичном контакте с водой поверхность становится гидрофильной (рис. 7, *b*). Однако если обработанная плазмой поверхность была вначале смочена нефтью, то при ее вытеснении водой поверхность остается гидрофобной (рис. 7, *c*). Создать гидрофильную поверхность для стенок, изначально смоченных углеводородной фазой, удастся с помощью предварительной обработки поливиниловым спиртом (рис. 7, *d*). Проведенные эксперименты доказали сохранение гидрофильных свойств пленки поливинилового спирта на протяжении нескольких суток, в течение которых шел эксперимент по вытеснению нефти водой из микрофлюидного чипа. Таким образом, была отработана технология гидрофилизации поверхности каналов микрофлюидных чипов как в случае вытеснения нефти водой, так и наоборот — воды нефтью.

Заключение

Разработана плазменная установка для обработки каналов микрофлюидных чипов из ПДМС с целью гидрофилизации стенок их каналов при смачивании поляр-

ными и неполярными жидкостями. Изготовлен электрод и подобран режим подачи напряжения, при котором происходит воспроизводимая и устойчивая модификация внутренней поверхности стенок загерметизированного микрофлюидного чипа. В результате разработана методика гидрофилизации стенок каналов микрофлюидных чипов с помощью их предварительной обработки диэлектрическим барьерным разрядом и финальной обработки поливиниловым спиртом. Предложенная методика позволила получать устойчивую во времени гидрофилизацию поверхности микрофлюидных чипов как в случае вытеснения нефти водой, так и наоборот. Установлено, что при такой обработке каналов микрочипов получается устойчивая гидрофилизированная поверхность, которая сохраняет свои свойства при прокачивании углеводородных жидкостей в течение нескольких суток. Создание такой методики является важным шагом в развитии микрофлюидных методов исследований в задачах нефтегазовой индустрии.

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 23-79-30022, <https://rscf.ru/project/23-79-30022/>

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] M. Omran, S. Akarri, O. Torsaeter. *Processes*, **991**, 2 (2020). DOI: 10.3390/pr8080991/
- [2] Schneider. *American J. Appl. Sci.*, **8** (11), 927 (2011).
- [3] Д. Перепонов, А. Щербакова, В.В. Казаку, М.Э. Гаджиев, М.А. Тархов, Е.Д. Шилов, А.Г. Черемисин. *Вестник нефтегазовой отрасли Казахстана*, **5** (1), 57 (2023).
- [4] M.M. Khayrullin, T.R. Zakirov, P.A. Grishin, E.D. Shilov, A.S. Bukatin. *Methods for Studying Two-Phase Flows in Porous Media: Numerical Simulation and Experiments on Microfluidics Chips*. In *Proceedings of the SPE Russian Petroleum Technology Conference (Virtual, 26–29 October 2020)*
- [5] B. Schumi, T. Clemens, J. Wegner, L. Ganzer, A. Kaiser, R.E. Hincapie, V. Leitenmüller. *Rock-on-a-Chip devices for high p, T conditions and wettability control for the screening of EOR chemicals* (SPE Europec featured at 79th EAGE Conference and Exhibition, June 2017), DOI: 10.2118/185820-MS
- [6] G. Hauke. *Fluid Mechanics and its Applications*, 86 (2008).
- [7] W. Yang, J.W. Brownlow, D.L. Walker, J. Lu. *Water Resources Research* (2021), DOI: <https://doi.org/10.1029/2020WR029522>
- [8] M.H. Schneider, H. Willaime, Y. Tran, F. Rezgui, P. Tabeling. *Anal. Chem.*, **82** (2010). DOI: 10.1021/ac101345m/
- [9] J. Wegner, L. Ganzer. *Rock-on-a-Chip devices for high p, T conditions and wettability control for the screening of EOR chemicals/* (SPE Europec featured at 79th EAGE Conference and Exhibition. June 2017), DOI: 10.2118/185820-MS
- [10] A. Olah, H. Hillborg, J.G. Vancso. *Appl. Surf. Sci.*, **239** (3–4), 410 (2005). DOI: 10.1016/j.apsusc.2004.06.005
- [11] M. Vorenkamp, Y. Murakami, T.Y. Chen, A. Starikovskiy, M. Nickerson, A. Rouso. In *AIAA Scitech*. 1–8 (2021).
- [12] Z. Fang, Y. Qiu, E. Kuffel. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **37**, 2261 (2004). DOI: 10.1088/0022-3727/37/16/007
- [13] K. Haubert, T. Drier, D. Beebe. *Lab. Chip*, **6** (12), 1548 (2006).
- [14] K. Krawczyk, A. Jankowska, M. Młotek, B. Ulejczyk, T. Kobiela, K. Ławniczak-Jabłońska. *Materials*, **16** (8), 2973 (2023). DOI: <https://doi.org/10.3390/ma16082973>
- [15] H. Si, L. Zhou, Y. Wu, L. Song, M. Kang, X. Zhao, M. Chen, J. Lin. *Composites Part B: Engineering*, 199 (2020).
- [16] T. Trantidou, Y. Elani, E. Parsons, O. Ces. *Microsystems and Nanoengineering*, **3**, 16091 (2017). DOI: 10.1038/micronano.2016.91
- [17] D. Wu, X. Xoan. *Electrophoresis*, **26**, 1 (2005).
- [18] A.S. Yakimov, A.I. Pryazhnikov, M.I. Pryazhnikov, A.D. Skorobogatova, A.V. Minakov. *Appl. Sci.*, **13**, 11 (2023).
- [19] S.C. Kim, D.J. Sukovich, A.R. Abate. *Chip*, **15**, 15 (2015). DOI: 10.1039/c5lc00626k
- [20] K. Ollegott, Ph. Wirth, Ch. Oberste-Beulmann, P. Awakowicz, M. Muhler. *Chemie Ingenieur Technik*, **92**, 10 (2020). DOI: <https://doi.org/10.1002/cite.202000075>