

# マイクロチャネル内異相界面を介した CO<sub>2</sub> 輸送現象の可視化計測 Visualization Measurement of CO<sub>2</sub> Transfer Process through Different - phase Interface in Microchannel

80823369 千賀友里子 (Yuriko Senga)

Supervisor : 佐藤洋平 (Yohei Sato)

## 1. 結論

大気環境分析, 気液間物質移動に基づく成分調整等, マイクロ流動場に気体試料を導入した多機能デバイスが注目を集めている<sup>[1]</sup>. 気液複合デバイスの最適設計においては, 適切な気液の接触方法を選択し, 気液間の物質移動を制御する諸要因の把握が不可欠となる. 本研究では, 気液の連続的接触機構, および高分子膜を介したマイクロチャネル内の CO<sub>2</sub> の輸送に焦点を当てた. 高分子膜を用いる気液間物質操作の内, 高い気体透過性を有するポリジメチルシロキサン(PDMS) を気体透過材料に選択したが, マイクロチャネル気液流動場内における, 気体透過過程の詳細な知見は得られていない. そこで, 2 つの気液間物質移動操作機構において液体流量, 気液の流路間距離および送気流量を変化させたときの CO<sub>2</sub> 透過率および液相流動場における CO<sub>2</sub> の輸送過程を, 液相に溶解した CO<sub>2</sub> 濃度および液体速度の同時計測手法を用いて評価する. 更に有限要素法を用いた数値解析を行い, 液体流れ方向 CO<sub>2</sub> 輸送過程について明らかにする.

## 2. 実験装置及び計測手法

気液連続的接触機構創出のため, Fig. 1 に示すチャネルの設計を行った. 気液の流路深さに差をつけ, 流路壁面を PDMS を用いて疎水性とすることで毛細管内における液体の表面張力を抑制し, 安定した気液連続的界面をマイクロチャネル内にすることができた. Fig. 2 に高分子膜を利用した気体透過マイクロチャネルを示す. 気体と液体の流路が 100, 200, 300 μm まで接近し, 流路間の PDMS を介して CO<sub>2</sub> が液相に移動する. 両チャネルは, PDMS の極低温下で高硬度となることを利用した極低温切削加工<sup>[2]</sup>を用いることで, 高精度に製作することができた.

気相から液相へと透過・溶解した CO<sub>2</sub> 濃度は, CO<sub>2</sub> の水への溶解が水素イオンを生成する化学反応を伴うことより, 式(1)を用いて pH より算出を行った.

$$[\text{CO}_2] = 10^{(pKa - 2pH)} \quad (pKa = 6.35) \quad (1)$$

pH 計測には蛍光色素の蛍光強度分布より濃度分布を求めるレーザー誘起蛍光(LIF) 法を, 液相速度計測にはマイクロ粒子追跡(PTV) 法を用い, 励起波長帯が同程度で, 発光波長の異なる色素と粒子を選定することにより pH および液体速度の同時計測<sup>[3]</sup>を行った. 作動液体はイオン交換水(IEW) を用い, 蛍光色素としてフルオレセインナトリウム(Table 1), 蛍光粒子としてポリスチレン(Table 2) をそれぞれ 100 μmol/l, 体積比率 0.05% で混入した. 実験装置を Fig. 3 に示す. 深さ方向に高い分解能を持つ共焦点スキャナ(横川電機株式会社, CSU22 β) を用い, ピエゾアクチュエータによる深さ方向計測位置制御を行うことで, 3 次元的可視化が可能となった. 深さ方向分解能は共焦点顕微鏡の被写界深度の理論式<sup>[4]</sup>より 1.4 μm となった. 粒子と色素の蛍光発光は 3CCD カメラ(浜松ホトニクス株式会社, C7780 - 20, 1344 × 1024 pixels, 8 bits × 3) 内のプリズムにおいて RGB に分光されるため, 速度と pH の情報を同時に得ることができる.

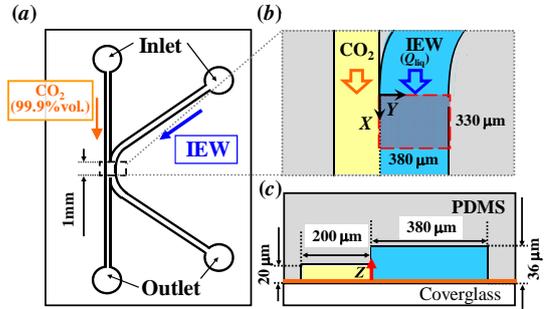


Fig. 1. (a) Top view (b) measurement area and (c) cross-sectional views of the gas and liquid parallel flow microchannel.

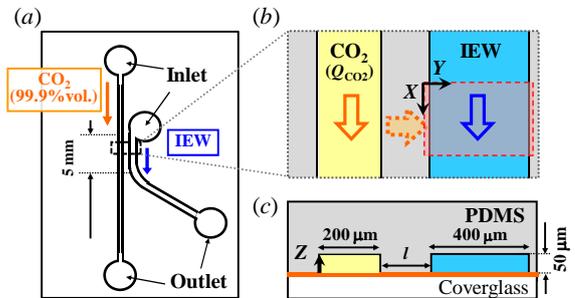


Fig. 2. (a) Top view (b) measurement area and (c) cross-sectional views of the membrane based microchannel.

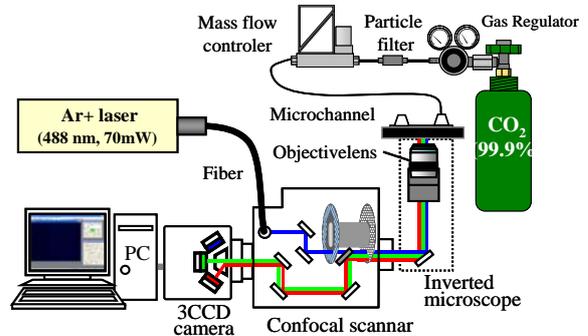


Fig. 3. Schematic of simultaneous measurement system using confocal scanner and 3CCD camera.

Table 1 Properties of fluorescent particles.

Product name	TransFluoSpheres
Material noun	Polystyrene
Diameter	[μm] 1
Density	[g/cm <sup>3</sup> ] 1.055
Absorption wavelength	[nm] 488
Emission wavelength	[nm] 645

Table 2 Properties of fluorescent dye.

Material noun	Sodium Fluorescein
Chemical formula	C <sub>20</sub> H <sub>12</sub> O <sub>5</sub> Na <sub>2</sub>
Molecular weight	376.82
Absorption wavelength	[nm] 494
Emission wavelength	[nm] 518

### 3. 実験条件

送液は水頭差による静圧駆動により行った。気液接触チャンネルにおいては、液体流量  $Q_{liq}$  と  $CO_2$  濃度  $C_{CO_2}$  の関係の評価するため、 $Q_{liq}$  を3通り変化させた。高分子膜を用いた場合は、 $Q_{liq}$  を一定とし、気液間流路距離  $l$  を 100, 200, 300  $\mu m$ 、送気流量  $Q_{CO_2}$  を 50, 75, 100, 125, 150  $\mu l/min$  と変化させた。カメラのフレームレート 55.5 ms にて 20 s ごとに 50 時刻の連続撮像を行った。

### 4. 実験結果および考察

#### 4.1 液相速度と $CO_2$ 濃度

Fig. 4 (a) に計測領域における液相速度と  $C_{CO_2}$  の二次元分布を示す。空間分解能は pH 計測においては  $5.16 \times 5.16 \mu m$ 、速度計測においてはマイクロ PIV の探索窓の大きさより  $6.45 \times 25.8 \mu m$  であった。Fig. 4 (b), (c) に流路断面における  $C_{CO_2}$  分布を示す。液相速度が遅い程、 $C_{CO_2}$  が高いことが分かる。式 (2), (3) を用いて対流流束  $J_c$ 、拡散流束  $J_d$  [ $mol/m^2s$ ] の算出を行った。

$$J_c = J_x \cong u C_{CO_2} \quad (2)$$

$$J_d = J_y = D_{CO_2-IEW} (\partial C / \partial x, \partial C / \partial y, \partial C / \partial z) \quad (3)$$

$J_c$  が  $J_d$  に比して 10 倍程度大であることから  $CO_2$  の輸送過程において、分子拡散に比して対流の影響が大であることが分かった。

#### 4.2 送気流量と $CO_2$ 透過性

Fig. 2 に示した PDMS を介した  $CO_2$  移動操作機構において、 $Q_{CO_2}$  を変化させたときの  $C_{CO_2}$  の時間変化を Fig. 5 に示す。送気開始以降、PDMS を透過し、液相に溶解した  $CO_2$  は、時間と共に増加し、一定時間後定常に至ることが確認された。Fig. 6 に任意の時刻  $t$ 、 $l$  における  $C_{CO_2}$  を示す。Figs. 5, 6 より、 $Q_{CO_2}$  にほぼ比例して液相に透過した  $CO_2$  濃度は増大することが示された。これは高分子膜表面に溶解する気体濃度は気体圧力に比例するヘンリーの法則と一致した。

#### 4.3 気液間流路距離と $CO_2$ 透過性

Fig. 7 に気液間流路距離  $l$  を変化させたときの任意の時刻  $t$ 、 $Q_{CO_2}$  における  $C_{CO_2}$  を示す。本実験条件において  $C_{CO_2}$  は  $l$  に反比例して減少することが確認された。これは気体の透過性は固体厚さに反比例するという膜の気体透過理論、および有限要素法による数値解析結果と同じ傾向を示した。

### 5. 結論

連続的気液接触機構および気体透過高分子材料を用いた気体選択的透過デバイスの開発を行い、マイクロチャンネル内気液界面および固気界面を介した気液流動場における気体の移動現象に関する定量的知見を得ることを目的とした。

(1) マイクロスケール気液流動場において、界面近傍における水素イオン濃度分布及び液体の速度分布から  $CO_2$  が溶解する様子が二次元的に明らかとなった。 $CO_2$  の輸送過程においては、液体の対流による輸送が分子拡散に比して大である。

(2) PDMS を気体透過高分子材料に用いた気液間物質移動機構において、気体の送気流量にほぼ比例して液相に透過した  $CO_2$  濃度は増大した。

(3) 気液間流路距離に反比例して液相に透過した  $CO_2$  濃度は減少し、膜の透過理論および数値解析結果と同じ傾向を示した。

#### 参考文献

- [1] V. Hessel, 他 3 名, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **44**, 9750-9769, 2005.
- [2] Y. Kakinuma, 他 2 名, *JAMDSM.*, **2**, 560-569, 2008.
- [3] M. Ichiyangi, 他 2 名, *Exp. Fluids*, **43**, 425-435, 2007.
- [4] J. S. Park, 他 2 名, *Exp. Fluids*, **37**, 105-119, 2004.

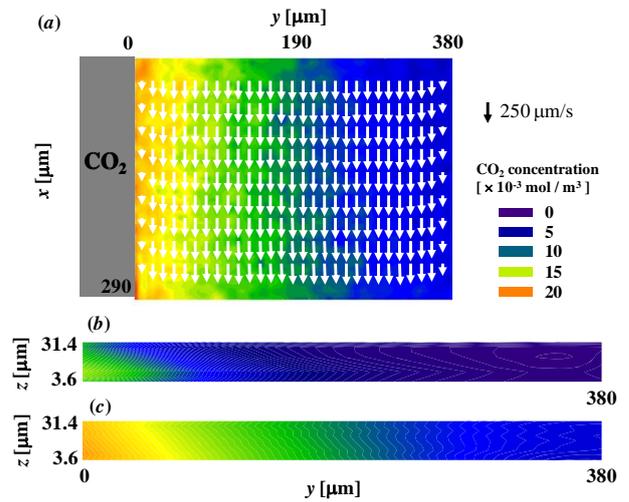


Fig. 4. (a) Velocity-vector and  $CO_2$  concentration distribution map at measurement area ( $Re = 0.012$ ,  $z = 10.8 \mu m$ ), (b) depth wise  $CO_2$  concentration distribution map ( $Re = 0.017$ ,  $x = 150 \mu m$ ) (c)  $Re = 0.012$

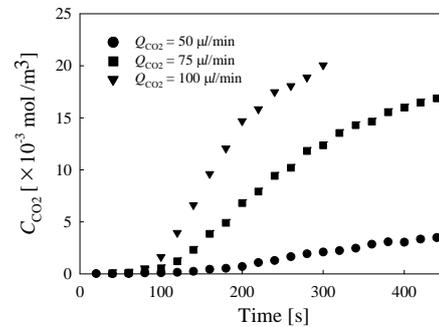


Fig. 5. Transients of permeated  $CO_2$  concentration through polydimethylsiloxane at 3  $Q_{CO_2}$  conditions ( $l = 300 \mu m$ ).

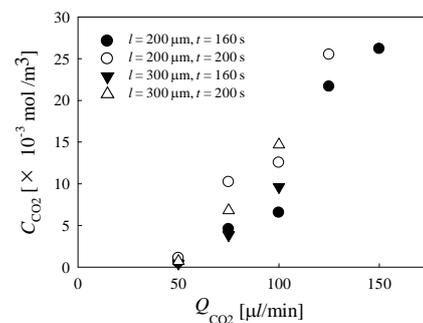


Fig. 6. Relation between supplying  $CO_2$  rate and permeated  $CO_2$  concentration at liquid phase ( $x = 100 \mu m$ ,  $y = 16-32 \mu m$ ).

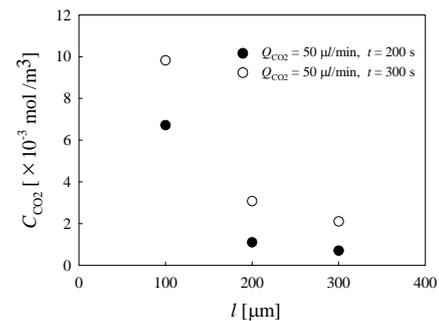


Fig. 7. Relation between gas/ liquid channel distance and permeated  $CO_2$  concentration at liquid phase ( $x = 100 \mu m$ ,  $y = 16-32 \mu m$ ).