

マイクロチャネル内液液界面による混合促進および界面流動構造の解明

Mixing Enhancement by Liquid-liquid Interface and Investigation of Interfacial Fluid Structure in Microchannel

80915187 飯野雅勇 (Masao Iino) Supervisor: 佐藤洋平 (Yohei Sato)

1. 緒言

マイクロ熱流体デバイスにおいて二物質の間に生じる界面は、抽出・物質輸送などの基本機能に影響を及ぼす場となっている。二液間の混合において電界の印加によりその接触面積を増大させるマイクロミキサー^[1]や、油水界面に生じる電位を利用した電気浸透ポンプ^[2]などの様々な提案がされており、更なる発展を目的として界面近傍における流動構造の解明が求められている。本研究では、様々な形で形成される界面近傍の流動構造の解明を目的とし、交流電界を印加した二溶液混合場における速度計測および可視化計測、また油水界面における界面電位計測を行う。

2. 界面動電現象

異なる二物質が接した界面では帯電が生じるため、界面近傍にはイオンが局在し電気二重層が形成される。このとき電界 E を印加すると層内のイオンが駆動されて電気浸透流が発生する。界面電位 ζ_w が一様である時、電気浸透流速度 U_{eof} は以下の Helmholtz-Smoluchowski の式で与えられる。

$$U_{eof} = -\frac{\epsilon\zeta_w}{\mu} E \quad (1)$$

ϵ および μ はそれぞれ液体の誘電率および粘性係数である。

3. 二溶液混合場計測

3.1 計測原理

電気浸透流速度 U_{eof} は、粒子の見かけの速度 U_p から粒子の電気泳動速度 U_{ep} を差し引くことで求められる。 U_p の計測手法として Kazuo らによる繰り返し速度計測手法^[3]を採用した。交流電気浸透ポンプによる駆動力が周期的に変動することから交流周期 $t = 0$ ms からの時系列計測を繰り返し、各周期同時刻のベクトルを重ね合わせることで U_p を算出する。

混合場の可視化計測には、レーザー誘起蛍光(LIF)法を用いる。LIF 法では、溶液に混入された蛍光色素濃度によって、蛍光強度が変化するため、片方の注入口にのみ蛍光色素を混入させた溶液を送液し、もう片方の注入口には溶液のみを送液することで、色素の蛍光強度から混合を可視化する。

3.2 実験装置および条件

Fig. 1 に実験装置を示す。水銀ランプ光を 20 倍の油浸系対物レンズにより集光させ、マイクロチャネル内を照射し、粒子からの蛍光を高速 CMOS カメラによって撮像間隔 10 ms で撮像した。また、高速 CMOS カメラと交流電界はパルスジェネレータにより同期した。本実験に用いたマイクロチャネルを Fig. 2 に示す。PDMS 製の深さ 50 μm の T 字型流路にカバーガラスを貼り合わせた。 $t = 0$ において周波数 $f = 1.0, 2.0, 4.0$ Hz, 振幅 1000 V の交流電圧を印加した。作動流体には、炭酸塩緩衝液 10 mmol/l に粒径 500 μm のポリスチレン蛍光粒子を体積比 0.01% で混入したものを用いた。一方、可視化計測には同様の緩衝溶液にフルオレセインを濃度 100 $\mu\text{mol/l}$ で溶解させた。

3.3 結果および考察

周波数 1 Hz における速度計測および可視化計測より得られた混合場内における見かけの粒子速度ベクトルマップおよ

び色素濃度二次元分布を Fig. 3 に示す。 $t = 0$ においては、電界が印加されていないため、混合場内の速度分布はほぼ対称となった。 $t = 3T/4$ では交流電界の印加によって下側流入口の流速が大きく増加していることがわかる。その結果、界面が y 軸正方向へ変動していることが濃度分布より確認された。

交流電界印加による流動場の変動を詳細に把握するために見かけの粒子の速度より電気浸透流速度を評価した。 Fig. 4 に $y = 0 \mu\text{m}$ 断面における y 方向速度成分分布を、 Fig. 5 に $x = 440 \mu\text{m}$ 断面における x 方向速度成分分布をそれぞれ示す。 Fig. 4 より交流電界の周期的な変化に伴い、 y 方向速度が周期的に変化している。同様に x 方向速度についても Fig. 5 より周期的な変化が見られる。電界が印加されていない $t = 0$ および $t = T/2$ では圧力駆動流が支配的となっている一方で、それ以外では電気浸透流により壁面付近では逆流が生じていることがわかる。このように、速度成分が周期的に変動することで界面が振動し、それによる混合促進が考えられる。

交流電界印加による混合促進を評価するため、リアクタ内の混合効率を算出した。ここで、混合効率 σ は式(2)によって示される^[1]。

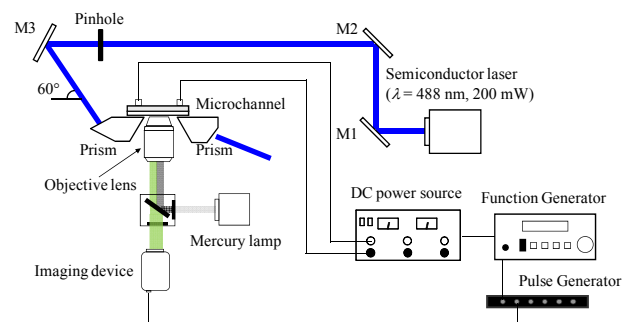


Fig. 1. Experimental setup.

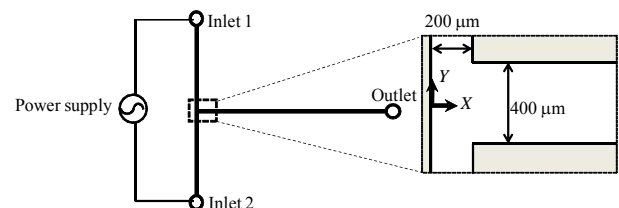


Fig. 2. Top view of the T-shaped micromixer applied AC voltage.

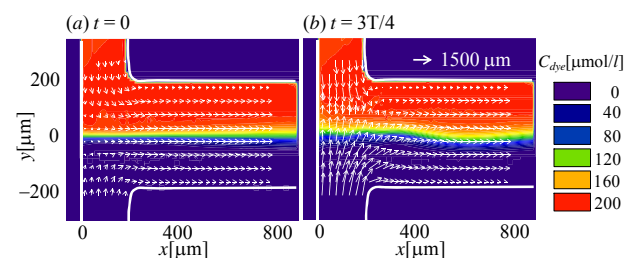


Fig. 3. Velocity vector map and dye concentration contour at (a) $t = 0$ and (b) $t = 3T/4$.

$$\sigma = \left(1 - \frac{\int |C - C_\infty| dy}{\int |C_0 - C_\infty| dy} \right) \times 100 \quad (2)$$

ここで、 C 、 C_0 、 C_∞ はそれぞれ観察された蛍光強度比、混合が全く起こっていない時の蛍光強度比 ($C_0 = 0$ or 1)、混合が完全に終わった場合の蛍光強度比 ($C_\infty = 0.5$) を表している。

算出された混合効率を Fig. 6 に示す。Fig. 6 より交流電界の印加によって混合効率は最大 7%程度向上しており、交流電界印加による混合促進が確認され、周波数により混合促進の違いが見られた。また、可視化計測で得られた画像より界面位置を推定し、界面の接触域長さを算出したものを Table 1 に示す。混合効率の促進と接触域長さの増大の間には相関が見られることがわかる。1 Hz の交流電界を印加した場合、接触域長さが約 30 μm 増大しており、速度成分が周期的に変動することで界面が振動し、界面の接触域が増大し、結果として混合促進が図られることが明らかとなった。

4. 油水面電位計測

4. 1 計測原理

界面電位は、電気浸透流速度 U_{eof} を算出し、式(1)に代入することで求めることができる。

4. 2 実験装置および条件

界面電位計測には界面近傍を局部的に撮像するために、励起光として、エバネッセント光を用いた。Fig. 1 において、半導体レーザ ($\lambda = 488 \text{ nm}$) からのレーザ光を、プリズムを通して、水 (屈折率 1.33, 比重 1.0) とイマージョンオイル (屈折率 1.52, 比重 1.26) によって形成される液液界面で全反射させた。エバネッセント光によって励起された蛍光を CCD カメラによって撮像間隔 37 ms で撮像した。本実験に用いたマイクロチャネルは、Fig. 7 に示したように PDMS 同士を貼り合わせて作成した流路部分の両側にホウケイ酸ガラスを貼り合わせている。この時、油相と水相の流路幅を変えることで安定した界面を実現した。このマイクロチャネルの水相部分に 200 V の電圧を印加した。作動流体には、Table 2 で示したイオン強度を 2.5 mmol/l に統一させた 3 種類の緩衝溶液を使用し、粒径 500 μm のポリスチレン蛍光粒子を体積比 0.01% で混入させた。

4. 3 結果および考察

3 種類の緩衝溶液を用いて算出した界面電位および比較として Kazoe らによって同一溶液を用いて計測されたホウケイ酸ガラスの固液界面電位を Table 3 にまとめる。油水面電位は固液界面電位の値に比べて小さくなっていることがわかる。これは、油水面における帯電のメカニズムが固液のそれと大きく異なるからであると思われる。KCl および CaCl_2 については固液界面の値との差が同程度となった。しかし、NaCl は固液界面の値と大きく異なる値を示すなど液液界面における帯電のメカニズムは依然として不明な点が多い。今後、より詳細な流動構造の知見を得るためには、界面電位を生じさせる界面近傍におけるイオンの対流と拡散を評価することが求められる。

5. 結言

液液界面近傍の流動構造の解明を目的とし、交流電界を印加した 2 溶液混合場計測、および油水面における界面電位計測を行った。交流電界を印加した 2 溶液混合場計測では、速度計測と濃度計測を併用することで交流電界による周期的な物質移動が明らかとなった。この周期的な物質移動によって、界面の接触域が増大した結果、混合促進が図られることがわかった。一方、油水面電位計測では、固液界面に比べて、界面電位は小さな値となり、油水面における帯電のメカニズムが固液のそれと大きく異なる可能性が示された。し

かしながら、まだ計測が不十分であることから、今後油水面流動構造解明を目指し、更なる液液界面電位計測が必要と思われる。

参考文献

- [1] J. C. Leong *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46**, 5345-5352, 2007.
- [2] A. Brask *et al.*, *J. Micromech. Micoeng.*, **15**, 883-891, 2005.
- [3] Y. Kazoe *et al.*, *Meas. Sci. Technol.*, **21**, 055401, 2010.
- [4] Y. Kazoe *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **95**, 234104, 2010.

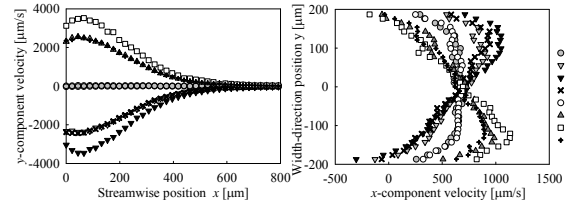


Fig. 4. Time series

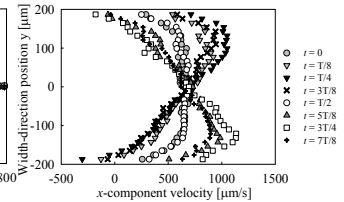


Fig. 5. Time series x-component velocity profiles in the Y-direction at $x = 440 \mu\text{m}$.

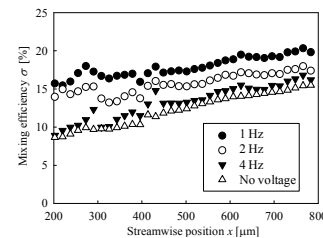


Fig. 6. Mixing ratio in the micromixer in the X-direction.

Table 1. Calculated length of contact interface

| Frequency [Hz] | 1 | 2 | 4 | 0 |
|---------------------------------------|-------|--------|--------|--------|
| Length of interface [μm] | 811.4 | 797.14 | 783.20 | 783.20 |

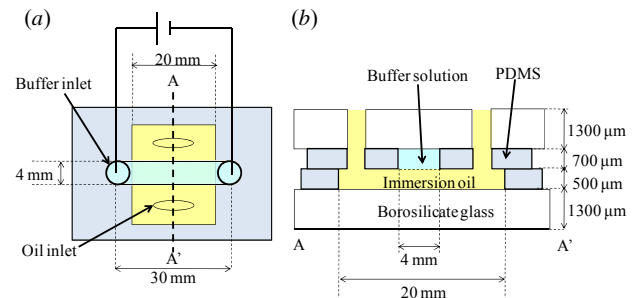


Fig. 7. (a) Top and (b) cross-sectional views of the microchannel to establish water-oil two phase flow.

Table 2. List of the conditions of the solution

| Solution | HEPES Buffer [mmol/L] | NaCl [mmol/L] | KCl [mmol/L] | CaCl_2 [mmol/L] |
|----------|-----------------------|---------------|--------------|--------------------------|
| A | 5.0 | 2.5 | - | - |
| B | 5.0 | - | 2.5 | - |
| C | 5.0 | - | - | 0.83 |

Table 3. Result of the liquid-liquid interfacial potential

| | Interfacial potential [mV] | |
|-----------------|----------------------------|-----------------------------|
| | Liquid-liquid | Liquid-solid ^[4] |
| NaCl | -60.4 ± 1.79 | -114.5 ± 1.36 |
| KCl | -70.2 ± 5.03 | -92.8 ± 1.43 |
| CaCl_2 | -43.3 ± 4.46 | -50.0 ± 1.17 |