1114 微小流路内における気泡特性評価

Evaluation of bubble characteristics in micro channels

○学 山口理知 正 楊 明

Noritomo YAMAGUCHI, Ming Yang, Tokyo Metropolitan University, 1-1 Minami-ohsawa, Hachioji-shi, Tokyo 192-0397, JAPAN

This paper describes evaluation of characteristics of air bubbles in micro channel. Micro channels for generation and separation bubbles were designed and fabricated. Air bubbles about $50\mu\text{m}$ in diameter were generated repeatedly, and trapped with micro channel to separate from the water. Air bubbles and flow around bubbles were visualized using micro-PIV. Removal characteristic of bubbles were evaluated by Reynolds number and Weber number. Scale effect was appeared while decreasing diameter of bubbles. Bubble energy for unit volume was proposed as the quantity to evaluate the adhesion bubbles and separate from the wall.

Key Words: μTAS , Bubble, micro-PIV,

1 緒言

数十 μm から数百 μm の微小な領域で、高効率な反応を行う Micro Total analysis System (μTAS), Lab-on-a-chip が注目されるようになった。 μTAS は、試薬供給部 (ポンプ)、混合部 (ミキサー)、反応部、検出部で構成されており、各構成要素の研究が盛んに行われている[1]。 μTAS では液体を扱うことが多く、流路内部に気泡が侵入したとき、送液や検出に悪影響を引き起こすことが問題となっている。現在までに、流路をふさぐような気泡について研究[2]が行われてきたが、気泡が壁面へ附着した微小気泡についての研究はなされてない。

本研究では、微小流路内部における気泡の特性として、付着と脱離の評価実験とモデル化を行うことにより、流路に浸入する気泡の除去、分離をについて考慮された μTAS における流路の設計指針を示すこととした。

2 マイクロチャンネルの作製

2.1 気泡生成チャンネル設計と評価

気泡を生成するために、作製したマイクロチャンネルを図1に示す。ドライエッチングとウェットエッチングによって Si に溝を加工、外部との接続のために超音波加工によって貫通穴を加工し、Si と SiO_2 を陽極接合している。

少量のサイズに切り出された気泡を、液体によって押し出すことで微小な気泡を生成した。手順を図2に示す。

①気体を送り込み中央の細いチャンネルに気泡充填

②両脇から液体を流し、余分な気体を排出

③閉じ込められた気体を押し気泡を生成

気泡生成実験および可視化装置を図3に示し、生成された気泡の画像と生成された気泡直径の分布を図4に示す。約直径 $50\mu\text{m}$ の気泡を繰り返し生成可能にした

2.2 気泡除去チャンネルの設計と評価

μTAS などの微小な流路に入り込んだ気泡を、システム外へ排除は困難であることが多い。そこで、気泡を除去するのではなく、気泡により悪影響を及ぼさない任意の位置に移動もしくは捕捉しておけばよいとして、本研究では、マイクロチャンネルを製作した微小スリットを用いて気泡を捕捉するチャンネル設

Fig.1 Image and size of Air bubble generation channel

Fig.2 Schematic Procedure of Air bubble generating

Fig. 3 Experimental setup

(a) Magnetic Image

(b) Histograms of generated air bubble diameter

Fig.4 Air bubbles generated by micro channels

計した。概略図を図5に寸法を表1に示す。気泡の捕捉原理は、微小スリットに気泡が浸入する時の気泡が形状変化し、表面エネルギーが変化することによるもので、これらの仕事は圧力によって仕事されたとして、次式で表された圧力差以下であるとき、気泡が通過できなくなる。

$$\Delta P = 2\gamma_{sl}(1/w + 1/h - 1/W - 1/H)$$

ここで γ_{sl} は表面張力[N/m]で、 w, h, W, H はそれぞれ細い流路幅、深さ、太い流路の幅と深さを示す。狭いスリット幅14 μm 、深さ78 μm 、広いスリット幅36 μm 、深さ88 μm のチャンネルによる気泡除去実験を行った。実際に気泡を捕捉した画像を図6(a)-(c)に示す。スリット幅以上のさまざまなサイズの気泡を捕捉できている。チャンネル入り口の圧力変化を図6(d)に示す。スリットをふさいでしまった瞬間から圧力が増加し、気泡は、幅の広いチャンネルからちぎれるようにして下流へ流れていき、そのときの圧力は減少した。その後捕捉された気泡により圧力が増加していた。気泡が通過した時圧力は、5.55kPaとなり幅の狭いスリットの理論値10.5kPaと幅の広いスリットの理論値3.9kPaとの間の値になった。理論値とは異なったものの、スリット幅を設計することにより所望の圧力まで気泡を捕捉することが明らかになった。本研究で提案したスリットによる気泡の捕捉を行う際には、流路全体をふさぐような大きな気泡には向かないが、スリット幅よりも大きく、スリットを完全に埋めない程度の気泡の除去に有効であるといえる。

3 気泡と気泡周りの流れの可視化計測

図3に示した実験装置を用いて、蛍光粒子510nmをトレーサ粒子と460nm~490nmの波長にフィルタリングされた水銀ランプと488nm単波長のArレーザの2種類の光源の照明により、観察を行った。気泡周りの流れの観察には、界面での散乱光が少ないArを使用し、気泡の挙動、形状の観察には水銀ランプを光源とした。

次に、流速0.89 $\mu\text{m}/\text{sec}$ のときの気泡周りのPIV計測を図7(a)に示した測定箇所について行った。主流のX、気泡上面Yとした速度分布を図7(b)、図7(c)に示す。底面から10 μm 刻みで30 μm までの流れを解析した。気泡よりも上流の流れのPIV結果から、深さ方向の速度変化を見ることができなかったが、水平速度分布について良好な解析結果を得ることができた。気泡の観察可能な倍率において、このような遅い流れではPIV解析可能であったが、気泡脱離時の気泡周りの流速は速く、ICCDカメラの性能の性能上、流速約5 $\mu\text{m}/\text{sec}$ までが限界であった。

3.1 壁面からの脱離までの気泡の形状変化

得られた画像から、気泡の脱離までの形状変化を画像相関法により測定した。得られた画像の気泡周囲に7点、投影面積の気泡の重心をG1、付着面積の重心をAG1した測定箇所を図8(b)に示す。AG1とG1間の流れ方向の距離は気泡の変形を、a1とa7間距離は、気泡の側面との付着長さを、a1~a8で囲まれた投影された気泡面積の変化を表し、流量を増加させたときの時間経過を図8(c)に示す。初期の状態からの変化を示す。付着までに、AG1とG1の距離が短くなっており、側面との付着長さが減少している。気泡が壁面から脱離するとき、付着面積が減少し、気泡の変形が起こっていることが明らかになった。

3.2 シミュレーションによる気泡脱離時の変形解析

Fig.5 Schematic diagram of air removal channel

Table 1 Specification of air removal channels

	Width [μm]	Depth [μm]
Narrow channel	12,23	77,85
Wide channel	38,62	86,90
Section A	1000	99

(a) Small bubbles (b) Middle bubbles (c) Large bubble

(d) Pressure change in air removal channel

Fig.6 Evaluation of air removal channel

(a) Measurement section of velocity distribution

(b) Velocity distribution at section X

(c) Velocity distribution at section Y

Fig.7 Velocity distribution of section X and Y

自由表面である気液界面をシミュレーション可能な Volume of fluid (VOF) 法を用いて気泡脱離シミュレーションを行った。VOF 法とは、計算を行うセルの液体充填率を VOF 値として設定することで、気体と液体の界面を表現するものである。図 9(a)(b) に使用したモデルを示し、図 9(c) に解析結果を示す。気泡の変形とともに、圧力や流速の分布を明らかにした。脱離時には、流れ上流から固気界面が減少し、気液界面が変形、界面からちぎれるように脱離した。最終的な脱離時の挙動は異なったが、脱離までのプロセスは実験によって観察された結果と同様となった。

4 気泡の特性評価

4.1 本研究における付着の分類

4 種類に分類した気泡の付着形態を図 10 に示す。本研究ではパターン 1 とパターン 4 を中心に観察を行った。

図 3 に示した実験装置で気泡の脱離実験を行った。生成した気泡が、 $1\mu\text{m}/\text{min}$ で流されず固液界面を持っているとき付着しているとみなし、流速を増加させていき、気泡の脱離までの過程を録画した。

4.2 気泡脱離現象と Reynolds 数, Weber 数との関係

粘性力に対する慣性力の大きさを表す Re と表面張力に対する慣性力の大きさを表す We の 2 種類によって気泡脱離現象の評価を行った。 Re と We はそれぞれ次式で表される。

$$Re = \frac{Vd}{\nu} \quad \text{ここで } \nu \text{ は動粘度} [\text{m}^2/\text{s}], d \text{ は間の内径} [\text{m}], V \text{ は平均流速} [\text{m}/\text{sec}], \rho \text{ は主流の流れの密度} [\text{kg}/\text{m}^3], L$$

$$We = \frac{\rho u^2 L}{\sigma} \quad \text{は気泡直径} [\text{m}] \text{を示す。}$$

Re 数と気泡直径との関係を図 11, We 数と気泡直径の関係を図 12 に示す。 We 数の気泡まわりの流速は、気泡の断面積を除いた流路断面積によって計算される平均流速を用いた。

気泡直径の減少にともない、 Re 数が増加していることから、脱離させるエネルギーが増加しており、小さな気泡は流れによって脱離しにくいといえる。また、 We 数と気泡直径との関係では、気泡の付着形態によって異なる傾向を示し、パターン 1 では気泡直径の減少にともない、 We 数が減少し、パターン 4 の気泡では、流路深さを境に逆の結果を示した。以上から、パターン 1 の気泡は径の減少にともない表面張力が支配的になり、付着形態がパターン 4 になると、上下の壁面が気液界面でつながり、表面張力の影響があらわれるように考えられる。また、本実験では、最後まで脱離せず液中へ解けこんでしまう気泡が観察された。気泡直径の時間経過を図 13 に示す。流速が増加するにつれて、気泡直径の減少速度は増加している。また、気泡直径が減少するにつれて、消失速度は増加する傾向をしめた。

5 エネルギーモデルによる付着、脱離現象の評価

流路内における気泡の取る状態が、表面自由エネルギー最小の状態を取ると仮定したモデルを用いて、気泡の付着と脱離現象について評価を行った。付着形態をパターン 1 に限定した時の、流路内の付着状態とエネルギー状態を図 14 に示す。

$$E_a: \text{気液界面のみで囲まれた球形の気泡のエネルギー} \quad E_a = A_a \gamma_a$$

$$E_b: \text{気液界面と固気界面で囲まれて壁面に付着している気泡のエネルギー} \quad E_b = (A_a + A_{ab} \cos \theta) \gamma_a$$

$$E_c: b \text{ と同様の形状で、気液界面のみで囲まれている気泡のエ}$$

(c) Deformation of air bubble before remove from the wall

Fig.8 Deformation of air bubble

(c) Simulation results

Fig. 9 Air removal simulation

Fig.10 Adhesion pattern

Fig. 11 Relationship between Reynolds number and air bubble diameter

エネルギー $E_b = (A_a + A_{dy})\gamma_{al}$

と表すことができる。ここで、 A_{al} は気液界面の面積、 A_{dy} は固液界面の面積を表す。また、 $L = (V)^{1/3}$ と定義した気泡長さで整理する。付着と脱離はエネルギーの遷移で考えると次のように表すことができる。

付着：aからb'を経て、bの状態へ遷移すること

脱離：bの状態からb'を経てaの状態へ遷移すること

付着のためのエネルギー： $E_{Adhesion} = E_b - E_a$

脱離のためのエネルギー： $E_{Remove} = E_b - E_{b'}$

単位体積あたりの $E_{Adhesion} - E_{Remove}$ と接触角、気泡長さの関係を図15に示す。気泡の径によっても変化するが、接触角が約70°を境にして、 $E_{Adhesion}$ と E_{Remove} 入れ替わる。70°以下では脱離プロセスが優先的に起こり、70°以上では、付着が優先的に起こるといえる。

次に、エネルギーがひずみとして脱離が起こるまで蓄えられと仮定する。単位体積あたりのエネルギーは $U = F^2 / \{2A^2G\}$ と表すことができる。ここでは、Fが気泡に加わる力、Aが流れ方向と平行な面に投影した気泡の断面積、Gが気泡の横弾性係数を表す。

変形した気泡の曲率半径の分布によって変形した気泡はもとの形状に戻ろうとする。変化した気液界面の曲率によって生まれるラプラス圧が気泡のひずみに線形であるとした。このエネルギーがエネルギーモデルによって評価した脱離条件である E_{Remove} に相当すれば気泡が脱離することになる。脱離を促進するためには、以下パラメータに関係する物理量を変化させればよいといえる。

Fを増やす：流速を増やす、粘度をあげる

Aを減らす：接触角を減少させる

Gを減らす：気泡を合体させて大きくする、もしくは、減圧し気泡を膨張させる。

6 Micro fluidic device の設計指針

本研究の結果から得られた気泡の付着と脱離特性から、以下の項目を改善すればよい。

流体と壁面との濡れ性：脱離には、最低接触角が70°以下。付着させるときには70°以上が好ましい。

流路形状：断面が正方形もしくは円形

送液方法：減圧による送液

気泡除去：長時間ながすことで液中に溶け込ませる

気泡除去チャンネル：スリット幅と同等の気泡が付着し気泡脱離が起こらない流速かつ、脱離する気泡が変形し通過しない圧力となる流速となるように流路を設計。

7 結言

本研究では、流路内部の気泡の状態分類し、表面自由エネルギーによって評価することで、気泡の付着と脱離要因を明らかにし、μ流体デバイスの設計指針を提案した。

8 参考文献

- [1]S.T.Wereley, N.T.Nyuyen, Fundamental and Application of Microfluidics, Artech House.
- [2]L.W.Scheartz, On the motion of bubble in capillary tubes, J.Fluid Mech.vol172, 239-275

Fig. 12 Relationship between Weber number and air bubble diameter

Fig.13 Diameter change of air bubble dissolve into water

Fig. 14 Energy condition at several air bubble types

Fig.15 Relationship among $E_{remove} - E_{adhesion}$, Bubble characteristic length, and contact angle