A107

高速度マイクロ PIV 法を用いたマイクロ流体デバイス内の 非定常流計測

篠原 恭介[○](東京大学), 杉井 康彦(東京大学), 青田 新(東京大学),

火原 彰秀(東京大学), 北森 武彦(東京大学), 岡本 孝司(東京大学)

Dynamic Micro PIV Measurement of Transient Flow in Microfluidic Device

Kyosuke SHINOHARA, Yasuhiko SUGII, Arata AOTA,
Akihide HIBARA, Takehiko KITAMORI and Koji OKAMOTO

ABSTRACT

This paper reports a new technique of micro-resolution Particle Image Velocimetry (PIV). To investigate transient phenomena in a microfluidic device, a high-speed micro-PIV technique was developed by combining a high-speed camera and a continuous wave (CW) laser. The technique was applied to a micro-counter-current flow, consisting of water and butyl acetate. The velocity fields of water in the micro counter-current flow were visualized for a time resolution of 500 μ s and a spatial resolution of $2.2 \times 2.2 \mu$ m. Using the micro-PIV technique, the vortex-like motions of fluorescent particles around the water-butyl acetate interface were captured clearly.

Keywords: High-speed imaging, Transient flow, Microfluidic device, Micro PIV

1. 結 論

近年、化学分析や有機化合物生成を微小流動を利用して単一基板上で行う μ -TAS, Lab-on-a chip といった分野の研究が盛んに行われ注目を集めている¹⁾²⁾。マイクロスケールの流れでは2流体の混合の際、接触界面積の試料体積に対する割合がマクロスケールに比べて大きく、かつ拡散距離が小さいという特徴を持つ。これらの特徴を生かしてマイクロチップ内に混合、反応、濃縮、分離、検出などの化学プロセスを集積化することによって、高効率の微量分析、化合物生成、細胞培養・抽出を実現するマイクロ流体デバイスが提案されている。一方、マイクロスケールの流れでは、粘性力・界面張力などの表面力が慣性力などの体積力に比べて大きく作用するという特徴があるためマクロスケールとは異なる流体挙動を示すことが知られており³⁾、特にマイクロチャンネル内の水-アルコールや水-油の界面においていくつか界面張力の影響が非常に大きくなるなどが報告されている⁴⁾⁵⁾⁶⁾。マイクロ流体デバイスを設計する上で界面を有する流体挙動を把握することは工学的に非常に重要である。

マイクロチャンネル内における流れ場を計測する手法として、これまでにマイクロ PIV 法が提案され⁷⁾、様々なマイクロ流体デバイス内の流れ場の計測に応用されている。一様なマイクロチャンネル内の流動現象は、低レイノルズ数で粘性が支配的なため定常であると考えられる。しかし最近、高効率の溶媒抽出を目的としたマイクロチャンネル内の水-油の向流システムにおいて非定常な流れが報告されている⁸⁾。これは幅 100 μ m のチャンネル壁面に化学修飾を施し、表面張力の制御によって水と油を接触させた状態で逆方向に駆動する、溶媒抽出用のマ

イクロ流体デバイスである。水と油を同じ方向に流す場合に比べて予想を上回る溶質の回収率を実現できることが熱レンズ顕微鏡⁹⁾によるコバルト錯体の検出によって確認され、その原因として水-油界面近傍の非定常な渦流の生成が報告されている。

本研究ではマイクロ流体デバイス内の水-油向流における非定常な流れを計測するため、高速度マイクロ PIV システムを開発、応用した。

2. 実験概要

2.1 高速度マイクロ PIV システム

水-油の向流界面における非定常流を調べるため、高速度マイクロ PIV システムの開発を行った。Fig. 1 に実験装置の概要を示す。光源には Nd:YAG CW レーザーを用いた。光源の波長は 532 nm (Green)であり、50 mJ の出力で連続光を発振する。照明はステージの下方からミラーを経て試料に照射している。試料中の蛍光粒子が励起されその励起光のみを 60 倍 NA0.9 の水浸対物レンズと 550 nm 以下の光をほぼカットする光学フィルターを通じてカメラで撮影している。蛍光は極めて微弱なため、イメージインテンシファイアを搭載した画素数 512 $\times$ 512 画素、10 bit 階調、2000 frame/s の高感度高速度 Complementary Metal-Oxide Semiconductor (CMOS) カメラを用いた。このカメラは新型の CMOS センサーと大容量の集積回路を搭載することで最大 6000 frame/s の画像を 512 $\times$ 512 画素の解像度で記録することができる。またイメージインテンシファイアを搭載しているため、微弱な蛍光を鮮明に得ることが可能となっている。

蛍光粒子として 535 nm で励起し 575 nm の励起光を発するものを用いた。この粒子は粒径 $1\mu\text{m}$ のポリスチレンのカプセルの中に非常に濃度の高いローダミンBの溶液が封入されておりそのため強い蛍光を発するという特徴をもつ。表面は親水性のため水・アルコールなど極性の大きい溶媒に対する分散性は良いが、一方で酢酸ブチルなどの油のような極性の小さい溶媒では吸着を引き起こす。そのため本研究ではマイクロチャンネル内の水-油向流における水側の速度場計測を行った。

Fig. 1 Experimental setup

2.2 マイクロチャンネル

マイクロチャンネルは $3\text{ cm} \times 7\text{ cm}$ の石英ガラスにウェットエッチングにより作成し、その上からカバーガラスを貼り付けた。Fig. 2 に概略図を示す。2つの入り口と2つの出口を持つX字型の構造になっており、幅 $100\mu\text{m}$ 、深さ $25\mu\text{m}$ となっている。2本の入り口にコネクタを接続し、もう一端を容量 1 mL のマイクロシリンジに接続する。マイクロシリンジをシリンジポンプで押すことで、圧力により各流入口から作動流体を一定流量で流した。作動流体には、水-油の溶媒抽出を想定しているため水と酢酸ブチルを用いた。水の密度、粘性係数、表面張力は 20°C でそれぞれ $1.00 \times 10^3\text{ kg/m}^3$, $0.89 \times 10^{-3}\text{ Pa s}$, $72.0 \times 10^{-3}\text{ N/m}$ である。一方、酢酸ブチルの密度、粘性係数、表面張力は 20°C でそれぞれ $0.88 \times 10^3\text{ kg/m}^3$, $0.69 \times 10^{-3}\text{ Pa s}$, $24.9 \times 10^{-3}\text{ N/m}$ である。チャンネル断面は底部が円形で、異なる2流体の界面を安定に保つためチャンネル底部からチャンネル中央に向かってガイド構造を持つ。さらに安定な水-油の2相流を作るためチャンネルの壁面に疎水・親水処理を施している。Fig. 3 に観察領域の拡大図を示す。2つのチャンネルの接触している距離は $500\mu\text{m}$ で、上側のチャンネルに酢酸ブチルが左から右へ、下側のチャンネルに水が右から左へそれぞれ流れ、チャンネル中央で2流体が接触している。上述の蛍光粒子を水側に入れている。酢酸ブチルが流れている上側のチャンネルはOctadecylsilaneによる修飾¹⁰を施しているため疎水性表面となり、下側のチャンネルは石英ガラスの性質として親水性表面となる。この疎水性修飾はチャンネル中央を境に高い精度で塗り分けられている。マイクロスケール流れでは表面張力が大きく作用するため、水-油の界面はチャンネルの上端とガイドの先端で固定される。その結果、非常に安定しにくい水-油

の向流界面の安定に実現できる。

Fig. 2 Microchip

Fig. 3 Microchannel

Fig. 4 Measurement region

Fig. 4 にハロゲンランプの透過光によって照明された観察領域を示す。サイズは $190 \times 190\mu\text{m}$ であり、1ピクセルが $0.37\mu\text{m}$ に相当する。観測位置はFig. 3の左側の分岐部から $10\mu\text{m}$ 右の位置で、観測深さはFig. 2のチャンネル上端から $7\mu\text{m}$ の深さの位置である。水、酢酸ブチルはそれぞれ界面付近の非定常な流れの発生条件である $0.1\mu\text{L/min}$, $1.3\mu\text{L/min}$ の流量で流れている。このときのレイノルズ数はそれぞれ 0.076 , 1.1 である。2流体の流量に大きく差があるため界面はどちらか一方

に偏ると予測されるが、チャンネル壁面に疎水・親水境界が存在するため界面はチャンネル中央付近で固定される。そのため界面がチャンネル中央で黒い線として観察される。これはと水酢酸ブチルの屈折率の違いによるものである。壁面も若干傾斜しているため散乱により黒く写っている。また 2000 frame/s という高い時間分解能で撮影が行われているため、蛍光粒子が透過光により黒い点として確認できる。

3. 実験結果

Fig. 5 に蛍光粒子画像から得られた時間平均速度分布を示す。合計 2000 枚、時間にして 1 秒間の画像を時間方向に平均している。瞬時の速度分布は 2 つの蛍光画像を勾配法¹⁾を用いて解析し、速度場を求めた。検査領域の大きさは 12 pixel × 12 pixel であり、50 %オーバーラップさせている。水側の領域の中心である $y = 75 \mu\text{m}$ 付近で速度は最大値をとり、約 2.0 mm/s となっている。壁近傍である $y = 60 \mu\text{m}$ 付近では速度はゼロとなるが、一方油水界面である $y = 90 \mu\text{m}$ 付近では速度がゼロとなる領域とそうでない領域があり流れ方向にたいして均一な分布になっていない。

Fig. 5 Time-averaged velocity distribution

Fig. 6 Streak lines

具体的には、ほとんどの領域で速度ベクトルは右から左への流れ方向に対してほぼ平行に向いているが、 $x = 75 \mu\text{m}$ から $x = 125 \mu\text{m}$ 、 $y = 80 \mu\text{m}$ から $y = 90 \mu\text{m}$ の領域では水—油界面を避けるような流れ場が速度ベクトルから観察される。これは、特にこの領域で非定常な渦を示す蛍光粒子の動きが観察されることに起因する。また、Fig.6 に 50 枚の画像から解析した流跡線を示す。蛍光粒子の軌跡を可視化することで流れの概要が判別できる。ほとんどの領域で流れに平行な流跡線が観察されるが、 $x = 75 \mu\text{m}$ から $x = 125 \mu\text{m}$ 、 $y = 80 \mu\text{m}$ から $y = 90 \mu\text{m}$ の領域で左から右へ逆流した後、右から左へ戻る流跡線が見える。また、すぐ外側ではこの領域を避けるような流れになっている。この傾向は Fig.5 に示した時間平均速度分布と一致していて、ここでも水—油界面における渦流が生成される領域の存在が確認できる。

Fig. 7 Time evolution of near-interface flow

Fig. 7にFig. 5中の四角で囲った領域における速度場の時間変動の例を示す。左側の図はこの領域の蛍光粒子画像で右側の図は2つの蛍光粒子画像から得られた瞬時速度分布である。tは撮影開始からの経過時間を表し、ここでは $t=90.0\sim91.5$ msの1.5 ms間を取り上げた。領域のサイズは $12\text{ }\mu\text{m}\times12\text{ }\mu\text{m}$ である。蛍光粒子が白い輝点として確認できるが、それぞれの大きさにばらつきがある。これは今回のシステムの焦点深度 $5.2\text{ }\mu\text{m}$ 内に存在する、異なる深さにある粒子が見えているためである。水側に近い領域内の下半分では粒子は水の流れに従い左から右へ移動している。一方、酢酸ブチル側に近い上半分では粒子は酢酸ブチルの流れに従い左から右へ移動している。流れ場は1.5 ms間で交差する流れから巻き込む様な流れに少しずつ変化している。これは水-油界面において急激な速度の変化が生じているためであると考えられるが、チャンネルのガイド構造よりチャンネル中央では3次元的な変動が大きい流れ場が存在する可能性があるため、今後界面付近の3次元流れ場や界面の3次元形状を詳しく調べる必要がある。

4. 結論

疎水・親水化学修飾をしたX字型マイクロチャンネル内の酢酸ブチル-水の油水向流界面における非定常流を計測するため、イメージインテンシファイアを搭載した高速度カメラとNd:YAG CWレーザーを組み合わせ高速度マイクロPIVシステムを開発した。さらに油水向流における水側の速度計測に応用し空間分解能 $2.2\times2.2\text{ }\mu\text{m}$ 、時間分解能 $500\text{ }\mu\text{s}$ の精度で速度分布を得た。その結果油水界面の非定常な渦のような流れの変動を捉えることに成功した。今回開発された高速度マイクロPIVシステムは、数多くの化学プロセスに利用されているマイクロチャンネル中の液滴生成流れ^{12),13)}や毛細血管中における拍動¹⁴⁾のような微小スケールの非定常流計測においてこれまでよりさらに高精度の時系列情報を取得するのに威力を発揮すると考えられ、今後様々な流れ場計測への応用が期待される。

参考文献

- 1) Manz A, Becker H. (Eds.): *Microsystem Technology in Chemistry and Life Science*, Springer (1999)
- 2) Weigl BH, Yager P, *Science*, 283 (1999) 346
- 3) Ho CM, Tai YC, *Micro-electro-mechanical-system (MEMS) and fluid flows*, *Ann. Rev. Fluid Mech.* 30 (1998) 579-612
- 4) Dreyfus R, Tabeling P, Willaume, *Ordered and disordered patterns in two-phase flows in microchannels*, *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003) 144505
- 5) Hibara A, Nonaka M, Tokeshi M, Kitamori T, *Spectroscopic analysis of liquid/liquid interfaces in multiphase microflows*, *J. Am. Chem. Soc.* 125 (2003) 14954-14955
- 6) Sugii Y, Okamoto K, Hibara A, Tokeshi M, Kitamori T, *Stabilization of interface between two liquid phases on a microchip by means of micro PIV technique*, *Proc. PSFVIP-4*, Chamonix, France (2003).
- 7) Meinhart CD, Wereley ST, Santiago JG, *PIV measurements of microchannel flow*, *Exp. Fluids* 27 (1999) 414-419
- 8) Aota A, Nonaka M, Hibara A, Kitamori T, *Micro counter-current*

flow system for highly efficient extraction, *Proc. Micro TAS 03*, Squaw Valley, USA (2003).

- 9) Kitamori T, Tokeshi M, Hibara A, Sato K, *Thermal lens microscopy and microchip chemistry*, *Anal. Chem.* 76 (2004) 52A-60A
- 10) Hibara A, Nonaka M, Hisamoto H, Uchiyama K, Kikutani Y, Tokeshi M, Kitamori T, *Stabilization of liquid interface and control of two-phase confluence and separation in glass microchips by utilizing octadecylsilane modification of microchannels*, *Anal. Chem.* 73 (2002) 1382-1386
- 11) Sugii Y, Nishio S, Okuno T, Okamoto K, *A highly accurate iterative PIV technique using gradient method*, *Meas. Sci. Technol.* 11 (2000) 1666-1673
- 12) Song H, Ismagilov RF, *Millisecond kinetics on a microfluidic chip using nanoliters of reagents*, *J. Am. Chem. Soc.* 125 (2003) 14613-14619
- 13) Link DR, Anna SL, Weitz DA, Stone HA, *Geometrically mediated breakup of drops in microfluidic devices*, *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004) 54503
- 14) Sugii Y, Nishio S, Okamoto K, *In vivo PIV measurement of red blood cell velocity field in microvessels considering mesentery motion*, *Physiol. Meas.* 23 (2002) 403-416