スケールアップモデルによる交互送液型マイクロリアクタの
フローパターン特性の可視化実験*富士原 民雄^{*1}, 大 上 浩^{*1}, 牛 島 達 夫^{*2}
鬼 頭 修 己^{*2}, 岡 本 秀 穂^{*3}Visualization of Flow Pattern Characteristics in
Alternate Pumping Microreactor Using Scale-Up ModelTamio FUJIWARA^{*4}, Hiroshi OHUE, Tatsuo USHIJIMA,
Osami KITO and Hideho OKAMOTO^{*4} Department of Mechanical Engineering, Musashi Institute of Technology,
1-28-1 Tamazutsumi, Setagaya-ku, Tokyo, 158-8557 Japan

In order to enhance the mixing and reaction yield in a microreactor, an alternate pumping method has been investigated. As the visualization results of the flow patterns generated by the alternate pumping in several types of micro channel, the flow patterns were classified into five categories depending on the pumping conditions, which are the Reynolds number and the non-dimensional infusion time that are defined by the infusion flow parameters. One of the flow patterns which we observed is a layered structure and is able to contribute to enhancing the diffusion mixing, because the molecular diffusion time is proportional to the square of the diffusion length and the thickness of each layer in the layered structure can be taken thinner than the width of micro channels, which is the diffusion mixing length in the case of the conventional concurrent pumping. The most appropriate channel for creating the layered structure is a cross-shaped channel consisting of two inlets and two mixing channel. It is confirmed that the thickness of each layer is less than one-tenth of the mixing channel width, i.e. the mixing time is reduced to less than one-hundredth of that in the concurrent pumping with the same dimension.

Key Words: Flow Visualization, Micromechanics, Fluidics, Chemical Reaction, Chemical Engineering Equipment, Microfluidics, Microreactor, Micromixer

はじめに

流体工学では、 μ TAS, MEMS, ラボ・オン・チップ等の技術がマイクロ・フルイディクスと呼ばれる新分野として注目されつつあり、マイクロリアクタあるいはマイクロミキサ⁽¹⁾についても、これらマイクロ・フルイディクスの一つとして研究がなされている⁽²⁾⁽³⁾。また、マイクロ・フルイディクスの研究手法として、マイクロ PIV 等の顕微鏡による可視化技術が盛んに利用されており、それらの研究成果に対する期待は高い。

マイクロリアクタとは幅が 1 ~ 100 μ m オーダのマイクロ流路内で、複数の物質を混合・反応させる装置であり、本研究では二種の液体を混合・反応させる場合を取り扱う。図 1 に示すような T 字型マイクロ流路を用い、二方向から二種の液体を一つの混合流路に注入する場合、流路内の流れはレイノルズ数が小さく層

流となるため、乱流による物質の混合はなく、物質は分子拡散のみによって混合される。したがって、均質な混合による反応収率の向上と反応時間の短縮ができるほか、試液量が少なく環境負荷が小さいことなどが、マイクロリアクタの利点として挙げられる。

今日のマイクロリアクタ技術では、さらなる混合・反応時間の短縮と反応収率の向上が課題となっている。混合・反応時間が長い場合、流路長が短いと流速（流量）が大きいと反応収率の低下を招く。よって、流体の流路内滞留時間を長くして十分な混合・反応時間を担保するためには、流路を長くするかもしれないが、流路長には加工上の制約があり、逆に流量を小さくすると生成物の生産量に制限が生じ工学上のデメリットが生じる。

従来の手法では二種の溶液を同時に混合流路に注入していたが、最近では注入圧力に変動を持たせるなどの方法による、動的な混合促進が試みられている。その中でも、Okamoto ら⁽⁴⁾や Kaneko ら⁽⁵⁾は、溶液を交互に送液する方法を提案している。

* 原稿受付 2005 年 8 月 10 日。

^{*1} 正員、武蔵工業大学工学部(☎ 158-8557 東京都世田谷区玉堤 1-28-1)。^{*2} 正員、名古屋工業大学工学部(☎ 466-8555 名古屋市昭和区御器所町)。^{*3} 京都大学大学院工学研究科(☎ 615-8530 京都市西京区京都大学桂)。

E-mail: tfujiwa@sc.musashi-tech.ac.jp

Fig. 1 Expected flow pattern generated by alternate pumping.

Fig. 2 Three channel shapes.

分子拡散による混合に必要な時間 T は分子拡散係数 α に反比例し、混合距離 L の二乗に比例する。

$$T \propto \frac{L^2}{\alpha} \quad (1)$$

α は物性値であるので、 T を小さくするには L を小さくするしかない。従来の同時送液では、図 1 (a) のように混合流路内で溶液は二分され、拡散混合距離は混合流路幅 L_{mix} となる。よって、 T を小さくするには L_{mix} を縮小すればよいが、それには加工上の制約が生じる。一方、交互送液により図 1 (b) のような薄い層構造が流路内に形成されるとするならば、拡散混合距離は層の厚さ L_l となり、送液条件によって L_l を L_{mix} よりも小さくして混合時間 T を短縮することが可能となる。

Fig. 3 Pumping time sequence.

しかし、混合流路内に形成されるフローパターンと交互送液条件の関係についてはまだ明らかになっておらず、混合流路幅よりも薄い層構造が実際に作れるかどうかは不明である。そこで、著者らは交互送液によるフローパターンの可視化実験を行い、その結果の一部を報告した⁽⁶⁾。本報では、流路形状についても層構造形成を容易にするため新たに考案したものを含めて三種類の形状のものをを用い、さらに詳細な実験結果よりフローパターン特性を解明し、マイクロアクタとしての流路形状を含む交互送液条件の最適化のための資料を得ることを目的とする。

一般的な寸法のマイクロアクタの流路において可視化を行うには高価な撮影機材を要し、また想定される交互送液の時間スケールが小さく撮影画像の十分な時間分解能を得ることが困難であった。そこで本実験では、レイノルズ相似則に基づくスケールアップモデルを用いることにより、比較的容易な可視化を可能とした。

1. 主 な 記 号

流路寸法

- L_{in} : 注入流路幅
- L_{mix} : 混合流路幅 ($= L_{in} \times 10$)
- d : 流路深さ ($= L_{in}$)

交互送液条件

- v_{in} : 注入平均速度
- Δt : 注入時間
- F : 送液周波数
- V_{in} : 注入体積

無次元量

- Re : レイノルズ数
- Δt^* : 無次元注入時間
- F^* : 無次元周波数

その他

- ν : 動粘度
- L_l : 平均層厚さ

Fig. 4 Schematic diagram of the experimental apparatus.

2. 支配パラメータの導出

本実験では図2に示す三種の形状の流路について実験を行った。各流路において、注入流路の幅を L_{in} 、混合流路の幅を L_{mix} 、流路深さを d とする。

交互送液は図3に示すタイムシーケンスで行った。一回あたりの送液は注入流路断面平均速度 v_{in} が一定でステップ的に行われ、加減速に要する時間は無視できるものとする。交互送液は注入時間 Δt の送液を周波数 F で繰り返す。ただし、送液時間のオーバーラップはないものとする。また、一回あたりの注入体積 V_{in} は、注入流路断面積 $A_{in} = L_{in}d$ を用い、

$$V_{in} = v_{in} \Delta t A_{in} \quad (2)$$

と表される。

本実験で取り扱う流れを支配する独立変数は、 L_{in} 、 L_{mix} 、 d 、 v_{in} 、 Δt 、 F 、 ν である。これらの中で L_{in} 、 L_{mix} については、薄い層構造を実現するためには L_{mix} に対して L_{in} になるべく小さい方が良いが、実際のマイクロリアクタ用チャネル加工上の限界を考慮し、 $L_{mix} = L_{in} \times 10$ とした。また、流路深さについても加工上の制約を考慮し、 $d = L_{in}$ と設定した。以上より L_{mix} と d は L_{in} の従属変数として扱える。よって、残りの五つの独立変数から、流体注入時の注入流路内流れに関する変数 L_{in} と v_{in} を代表変数に選ぶと、 ν 、 Δt 、 F よりレイノルズ数 Re 、無次元注入時間 Δt^* 、無次元周波数 F^* が以下のように得られる。

$$Re \equiv \frac{L_{in} v_{in}}{\nu} \quad (3)$$

$$\Delta t^* \equiv \frac{\Delta t v_{in}}{L_{in}} \quad (4)$$

$$F^* \equiv \frac{F L_{in}}{v_{in}} \quad (5)$$

Δt^* は式 (2)、(4) より

$$\Delta t^* = \frac{\Delta t V_{in}}{L_{in} \Delta t A_{in}} = \frac{V_{in}}{L_{in}^2 d} \quad (6)$$

とも表され、 Δt^* は注入体積 V_{in} に比例するパラメータでもあることが分かる。

以上より、相似形状流路内のフローパターンは三つのパラメータ Re 、 Δt^* 、 F^* によって規定されることが示された。本研究では、三次元パラメータ ($Re, \Delta t^*, F^*$) 空間におけるフローパターンの系統的变化を可視化実験により調査し、交互送液法によるマイクロリアクタの可能性とのための最適条件を探ることを主な目的とする。なお、注入流路幅 L_{in} を $10 \sim 150 \mu\text{m}$ 、注入速度 v_{in} を最大 1 m/s オーダと想定し、動粘度は $\nu \sim 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (水と同程度を想定) を仮定して、レイノルズ数 Re の調査範囲を最大 150 程度とした。

3. 実験装置および方法

図4に実験装置概略を示す。試験部には二つの注入流路および混合流路からなるマイクロ流路があり、注入流路上流にはリザーバーがある。リザーバーにはピストンが挿入されており、このピストンをリザーバーへ押し込むことにより送液する。ピストンの駆動はマイクロメータヘッドとステッピングモータで構成される送り装置によって行われ、ステッピングモータの動作はPCによって制御される。

マイクロ流路形状は、図2に示す三種について実験を行った。T字型は現在最も一般的なマイクロリアクタ流路の形状の一つであり、二つの注入流路と一つの混合流路が直交している。t字型はT字型の混合流路反対側に窪みを設けたものであり、十字型では混合流路と出口を反対側にもう一つ設けた。なお、十字型は二つの混合流路内での圧力勾配が異なると両者におけ

る流量が異なるため、同流量になるように流動抵抗を調整した。

全ての流路は、可視化を容易にするため前章で示したパラメータがレイノルズの相似性を満たすスケールアップモデルを用いた。スケールアップモデルにおける変数には' (プライム) をつけて表すとすると、レイノルズ数が等しい場合には、

$$Re = \frac{L_{in} v_{in}}{\nu} = \frac{L'_{in} v'_{in}}{\nu'} \quad (7)$$

が成立する。供試流体としていずれも水を用いるので、動粘度は等しく $\nu = \nu'$ となり、 $L_{in} v_{in} = L'_{in} v'_{in}$ を得る。ここで、スケールアップ比を $\beta \equiv L'_{in}/L_{in}$ とおくと、速度スケールの比が

$$\frac{v'_{in}}{v_{in}} = \frac{1}{\beta} \quad (8)$$

となる。一方、時間 Δt に対しては、

$$\Delta t^* = \Delta t \frac{v_{in}}{L_{in}} = \Delta t' \frac{v'_{in}}{L'_{in}} \quad (9)$$

$$\therefore \frac{\Delta t'}{\Delta t} = \frac{v_{in}}{v'_{in}} \frac{L'_{in}}{L_{in}} = \beta^2 \quad (10)$$

の関係が成立する。本実験で用いたスケールアップモデルでは、流路製作が容易で、比較的安価な機材による撮影を可能とするため、 $L'_{in} = 0.4 \text{ mm}$ 、 $L'_{mix} = 4 \text{ mm}$ と設定した。仮にマイクロリアクタの注入流路寸法を $L_{in} = 50 \text{ } \mu\text{m}$ とすれば、 $\beta = 8$ で時間は 64 倍の拡大となり、フローパターンの時間変化を十分な時間分解能で撮影することができる。

4. 実験結果および考察

4.1 フローパターンの分類 本実験で観察された五つのフローパターンについて、それぞれの典型的な可視化画像を図 5 に示す。なお、各画像は左側からの注入が終わった瞬間のものである。フローパターンは注入流体が注入方向にどこまで到達したかによって変化し、送液条件を連続的に変化させた場合、フローパターンは次の A から E の間を連続的に変化する。

- A 注入流体は混合流路中央までしか到達せず、交互送液の影響が現れず、平らな界面が形成される。
- B 流体はやや深くまで到達し、交互送液の影響が現れ、界面が波型になる。
- C さらに流体が深く到達し、混合流路主流の速度分布によって波型界面が放物線状にゆがむ。
- D 流体が対壁面に到達し、混合流路に層が形成される。
- E 流体が対壁側に偏り、両流体が入れ替わって分離される。

以上の五つのパターンで本実験の目的である層構造を混合流路に形成するのは、パターン D のみである。

T 字型について注入流体の動きを観察すると、上壁に接した流体が粘性せん断力によって減速・静止するため、いずれのパターンにおいても流体がもう一方の流体に交換されない領域が注入流路近傍に存在する。その結果、流体が持つ注入方向モーメントを失い、主流が注入方向から混合流路方向へ曲がり、注入流体が対壁に到達しにくくなる。

上壁による摩擦の影響をなくするために窪みを設けた t 字型流路では、T 字型に比べると注入方向モーメントの損失が軽減され、注入流体が対壁へ到達しやすくなる。しかし、窪みの中の静止流体からのせん断力は存在し、注入流体の進行方向が混合流路方向へ転換し、流体が交換されない領域が存在する。

そこで、注入流体の方向転換をなくするため、十字型では注入流路中心軸に対して対称な流れになるよう、二方向に混合流路を設けた。その結果、図からわかるように、流体は進行方向を転換することなく注入され、容易にパターン D を形成することが出来た。

図 6 に十字型流路におけるパターン D の模式図を示す。層の形状を見ると、主流の進行と共に壁面摩擦によって界面が放物線状に引き伸ばされ（ストレッチ効果）、層の厚さは下流へ進むほど薄くなっていく。本研究の目的である薄い層構造の形成の観点からは、このストレッチ効果は混合促進に寄与する。

4.2 フローパターン分布 送液条件は三つの無次元数 Re 、 Δt^* 、 F^* によって規定されるが、これらの内レイノルズ数 Re と無次元注入時間 Δt^* よりなる二次元空間におけるフローパターンの分布図を図 7 に示す。ただし、無次元周波数については $F^* = 0.001 \sim 0.05$ で実験を行い、すべての結果を区別せずに図 7 に示した。この結果、フローパターンが F^* に依存せず、二次元 ($Re - \Delta t^*$) 空間によって整理できることが分かった。その理由を以下に述べる。

周波数は注入時間と送液停止時間の和の逆数として与えられるので、注入時間が与えられる場合、周波数は停止時間のみの関数と考えられる。停止時間中の流体の運動に着目すると、注入流路より混合流路に注入された流体は、注入が終了し次に反対側から流体が注入されるまでの停止時間中も慣性により運動を続けるが、運動は粘性によって時間と共に減衰する。今回の条件ではレイノルズ数が小さく粘性力の影響が強く運動の減衰が早いので、停止時間中の運動の影響は無視できる。したがって、フローパターンは送液停止時間の長さには依存せず、注入時間が与えられる場合には

	Flow pattern				
	A	B	C	D	E
'T'
	$Re = 16, \Delta t^* = 10$	$Re = 21, \Delta t^* = 40$	$Re = 56, \Delta t^* = 70$	$Re = 96, \Delta t^* = 90$	$Re = 288, \Delta t^* = 90$
't'
	$Re = 16, \Delta t^* = 10$	$Re = 32, \Delta t^* = 20$	$Re = 40, \Delta t^* = 50$	$Re = 64, \Delta t^* = 80$	$Re = 288, \Delta t^* = 90$
Cross
	$Re = 16, \Delta t^* = 10$	$Re = 21, \Delta t^* = 40$	$Re = 48, \Delta t^* = 60$	$Re = 64, \Delta t^* = 100$	$Re = 160, \Delta t^* = 100$

Fig. 5 Visualization results of flow patterns when the infusion from the left inlet has been finished.

Fig. 6 Schematic diagram of Pattern D in the cross-shaped channel.

周波数にも依存しない。

その結果、流体の注入速度と注入時間によって注入流体がどこまで到達するかによってのみフローパターンが決まる。式(3)、(4)に示したように、 Re と Δt^* は流体注入時の注入流路内流れに関するパラメータより定義される無次元量であることから、フローパターン分布は Re - Δt^* 二次元空間内で表すことが出来る。

二次元空間におけるフローパターン特性は、 Re と Δt^* が大きいほど、パターンAからEへ変化する。式(3)、(4)、(6)が示すとおり、 Re が大きい場合には注入速度 v_{in} が大きく注入流体の持つ慣性力が粘性力に対して大きくなり、 Δt^* が大きい場合には注入時間 Δt お

(a) 'T'-shaped channel

(b) 't'-shaped channel

(c) Cross-shaped channel

Fig. 7 Flow pattern maps in Re - Δt^* space.

Fig. 8 Figures of Pattern D under the conditions closed to the boundary of Pattern C-D or D-E.

および注入体積 V_{in} が大きくなることから、注入流体がより奥へ侵入する。図7はこの特性を表している。

4.3 送液条件の最適化 本研究の目的である薄い層構造を混合流路内に形成するための条件を導く。層構造となるフローパターンはDである。パターンDのときの層の平均厚さ L_l は、T字型およびt字型の場合は、

$$L_l = \frac{V_{in}}{L_{mix}d} \quad (11)$$

十字型では注入流体が二方に分かれるので、

$$L_l = \frac{V_{in}}{2L_{mix}d} \quad (12)$$

と表され、式(6)より V_{in} は Δt^* に比例するので、平均層厚さ L_l は Δt^* に比例する。図7で Δt^* がより小さい領域でパターンDが形成されるのは、十字型流路の場合である。しかも、式(12)に示したように、同じ V_{in} でもT字型とt字型に比べて層の厚さは半分になるので、薄い層構造を形成するのに最も適した流路形状は十字型となる。

図8に示すように、パターンDでも、パターンCやEの領域に近い条件では、層構造を形成しながらも互いの層が左右に偏った形状となる。理想的な左右でほぼ均一な層構造が形成される条件は、図7(c)の破線で示した

$$\Delta t^* = 175 - 1.4Re \quad (13)$$

となる。

次に、十字型流路で理想的なパターンDが形成される時、平均層厚さ L_l の混合流路幅 L_{mix} に対する比は、式(6)、(12)より

$$\frac{L_l}{L_{mix}} = \frac{1}{2} \frac{L_{in}^2 d}{L_{mix}^2 d} \Delta t^* = \frac{1}{2} \frac{L_{in}^2}{L_{mix}^2} \Delta t^* \quad (14)$$

Fig. 9 Flow pattern of the thin layers structure in the cases of (a) $Re = 96$, $\Delta t^* = 30$ and (b) $Re = 110$, $\Delta t^* = 20$.

と書ける。同時送液よりも混合が促進される条件は、層厚さが混合流路幅よりも小さい、すなわち $L_l/L_{mix} < 1$ となることであるので、

$$\Delta t^* < 2 \frac{L_{mix}^2}{L_{in}^2} \quad (15)$$

となる。

以上より、交互送液による混合促進の条件は、式(13)と式(15)を満足することである。

次に、実機での送液条件を算出する。注入時間 Δt は、式(3)を式(4)に代入し、

$$\Delta t^* = \frac{v \Delta t Re}{L_{in}^2} \quad (16)$$

$$\therefore \Delta t = \frac{L_{in}^2 \Delta t^*}{v Re} \quad (17)$$

と表される。また、注入速度 v_{in} は、式(3)より、

$$v_{in} = \frac{v Re}{L_{in}} \quad (18)$$

となる。

今回実験を行った条件では Δt^* の最小値は 20 であった。図 9 に $Re = 96$, $\Delta t^* = 30$ の場合と $Re = 110$, $\Delta t^* = 20$ の場合のフローパターンを示す。この結果より、薄い層構造が形成され、図 5 と比較すると二種の溶液の層の境界が不明確になっており、注入直後から混合されつつあることが確かめられる。また、各層の厚さはほぼ一様であり、注入流路近くの層でも最大厚さが平均厚さ L_l と同程度とみなせ、下流においては主流のストレッチ効果により、実質的な層の厚さはさらに小さくなる。

式(13)より $\Delta t^* = 20$ の場合の最適なレイノルズ数は $Re = 110$ となる。また、想定条件より $L_{in} = 50 \mu\text{m}$,

$L_{mix} = 500 \mu\text{m}$, $d = 50 \mu\text{m}$, $\nu = 1 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ とする。これらの条件を式(14), (17), (18)に代入すると、層厚さ比 $L_l/L_{mix} = 1/10$, 注入時間 $\Delta t = 0.45 \text{ ms}$, 注入速度 $v_{in} = 2.2 \text{ m/s}$ (流量に換算すると $5.5 \mu\text{l/s}$) となる。実質的な層の厚さは平均層厚さよりも小さくなることから、式(1)より同時送液に比べて交互送液により混合時間が 1/100 未満に短縮される。

4.4 チャネル寸法の効果とレイノルズ相似則について 今回の実験結果より得られたフローパターン特性は、レイノルズ相似則の仮定が正しければ実際のマイクロリアクタでも成立する。しかし、完全相似が満足出来ない要因によってフローパターン特性が変化する可能性はあるので、チャネル寸法や流体の動粘度を変化させてレイノルズの相似則を検証する必要がある。また、今回の実験は、三つのチャネル寸法 L_{in} , L_{mix} , d は全て同じ条件で行ったが、これらの寸法比が異なった場合にはフローパターン特性が変化することが予想される。

これらの点については今後の更なる実験を行い、続報として報告する予定である。

おわりに

マイクロリアクタの交互送液による混合促進条件の最適化のため、フローパターン特性を可視化により明らかにした。フローパターンは注入流体の注入方向への侵入の度合いによって変化し、パターン A から E へ連続的に変化する。混合促進に適した層構造となるフローパターンは D である。フローパターンは、流体注入時の注入流路内流れに関するパラメータで定義されるレイノルズ数 Re と無次元注入時間 Δt^* によって整理され、 Re と Δt^* が大きいほど A から E に変化する。交互送液により最も薄い層構造を作りやすい流路形状は十字型であり、パターン D の時の平均層厚さは Δt^* に比例する。これまでに十字型流路でパターン D を形成されることが確認できた Δt^* の最小値は 20 で、この場合 Re は 110 とすれば理想的な層構造が形成され、実質的な層厚さが混合流路幅の 1/10 未満になり、このときの混合時間は同時送液に比べて 1/100 未満となる。

文 献

- (1) Ehrfeld, W., Hessel, V. & Loewe, H., *Micro-reactors - New Technology for Modern Chemistry*, Wiley/VCH, New York/Weinheim, (2000).
- (2) Tan, C. K. L., Tracey, M. C., Davis, J. B. and Johnston, I. D., *Continuously variable mixing-ratio micromixer with elastomer valves*, "J. Micromech. Microeng.", Vol. 15, (2005), pp. 1885-1893.

- (3) Horiuchi, K., Obata, H. & Matsudaira, Y., *Evaluation of Micro Mixer Performance with Multiple Visualization Technique*, Proceedings of JSME Fluid Engineering Conference 2004, (2004), 206.
 - (4) Okamoto, H., Ushijima, T. & Kitoh, O., *New methods for increasing productivity by using microreactors of planar pumping and alternating pumping types*, "Chem. Eng. J.", Vol. 101, (2004), pp.57–63.
 - (5) Kaneko, T., Izawa, S., Xiong, A. K. & Fukunishi, Y., *Mixing enhancement of two liquids by active control in a millimeter-scale channel flow*, "Proc. 10th Asian Cong. Fluid Mech.", (2004), A19.
 - (6) Fujiwara, T., Ushijima, T., Okamoto, H., Kitoh, O. & Ohue, H., *Characteristics of Flow Pattern in Alternative Pumping Microreactor*, "Proc. 6th KSME-JSME Thermal and Fluids Eng. Con.", (2005), KF02.
-