多波長共焦点マイクロ PIV による マイクロ液滴生成過程の計測*

大石 正道¹⁾, 大島 まり²⁾, 木下 晴之³⁾, 藤井 輝夫⁴⁾, 小林 敏雄⁵⁾

Measurement of microdroplet formation process using multicolor confocal micro PIV

Masamichi OISHI, Marie OSHIMA, Haruyuki KINOSHITA, Teruo FUJII
and Toshio KOBAYASHI

ABSTRACT

This paper aims to investigate a mechanism of microdroplet formation using “multicolor confocal micro particle image velocimetry (PIV)” technique. This system consists of a conventional confocal micro PIV system and multicolor separation optics, which utilize two lasers for illumination and record fluorescent light at two distinct wavelengths. In order to capture clear particle images and eliminate unnecessary scattering light, the optical components (e.g., filters and dichroic mirror) are chosen based on their optical properties.

The new system can measure dynamical behavior of multiphase flow separately and simultaneously. It also enables to identify the interactions between different phases such as ‘solid-liquid’ or ‘liquid-liquid’. We have applied this system to measure the water droplet formation in surrounding oil phase at a micro T-shaped junction.

We have also succeeded to disperse fluorescent tracer particles into both phases. The interaction between the internal flow of to-be-dispersed aqueous phase and that of continuous oil phase are measured as a liquid-liquid multiphase flow. As a result, the interactions involved in biphasic interfaces show the flow structure of squeezing, dripping and circulation motion inside each phases depending on the Capillary number.

Keywords: Confocal micro PIV, Multicolor separation, Capillary number, Interfacial tension

1. 緒 論

1.1 マイクロ流体デバイスとマイクロ液滴

近年、発展の目覚ましいマイクロ TAS (Micro Total Analysis Systems) の分野においては、混合や反応、微粒子の分離、運搬といった様々な機能を微小流体の正確な操作により実現するマイクロ流体デバイスが開発されている^{1),2)}。これらは流路の微細化により、比表面積の拡大やデッドボリュームの少なさによる混合や反応の高速化、高

効率化、集積化、さらには生産性や携帯性の向上など、従来の流体デバイスに比べ多くの利点が得られ、様々な分野への応用が期待されている^{3),4)}。

中でも、マイクロ液滴は混ざり合わない 2 種の流体を分岐などの特殊な流路構造に導入して微小な体積に分割することにより、定量的な反応や分析を行うために最適なチャンバを形成することができる⁵⁾⁻⁷⁾。他にも、生体細胞を内包しての個別培養⁸⁾や液滴内での結晶生成⁹⁾、液滴を硬化させることで均一なマイクロビーズを生成する手法¹⁰⁾⁻¹²⁾など有用なアプリケーションが多種開発されている。

これらアプリケーションの主な操作を実現するのは液滴や固体粒子が周囲流体中に混在するマイクロ混相流下であり、それぞれの相が界面を介して及ぼし合う力学的相互作用を利用している。流体操作の効率化や流路内で起こっている物理現象の解明のためには、マイクロスケールに

* 原稿受付 2010 年 4 月 3 日

1) 正会員 東京大学 生産技術研究所 (〒153-8505 東京都目黒区駒場 4-6-1, E-mail: oishi@iis.u-tokyo.ac.jp)

2) 正会員 東京大学 大学院情報学環

3) 正会員 東京大学 生産技術研究所

4) 東京大学 生産技術研究所

5) フェロー 日本自動車研究所

おける各相の流速分布や界面形状を高解像度かつ定量的に計測する必要がある。しかし、サイズスケールが数十～数百 μm であるマイクロ流路内の流速を計測するには、熱線流速計などのプローブを用いる手法は物理的に困難で、流速分布を得ることも難しい。そこで注目したのが、場の速度分布を低侵襲で計測可能なマイクロ PIV (Particle Image Velocimetry: 粒子画像流速測定法)^{13),14)}である。

本研究ではマイクロ混相流の挙動解明を目指し、各相の流速分布を定量的かつ同時に計測できるマイクロ PIV システムの開発に主眼を置いている。従来研究としては、Yoon らが示した 2 相流の同時計測¹⁵⁾があるが、透過光照明と低倍率観察に起因する被写界深度の深さにより、計測精度の不足や、各相に混入したトレーサ粒子の識別の難しさなど、課題が多く残されている。そこで本研究では、Park ら¹⁶⁾、木下ら¹⁷⁾が開発した、面外方向解像度が高く、S/N 比の良好な共焦点マイクロ PIV システムをベースに、多波長励起・蛍光分離光学系を組み込んだ、混相流計測のための多波長共焦点マイクロ PIV システム¹⁸⁾を開発し、その機能について検証する。

1.2 T 字ジャンクションにおける液滴生成過程

計測対象として、マイクロジャンクションを用いたマイクロ液滴生成過程解明のための速度場の定量的計測を行う。マイクロジャンクションを使用した液滴生成機構は主に二つのタイプに大別される。一つは、Fig. 1 に示すようにメインとなる直線流路に垂直に別の直線流路を接合した T 字ジャンクションを用い、メイン流路から連続相を、それと直交する流路から分散相を流し、合流地点で分散相を分断する T 字ジャンクション (T-shaped junction) 型¹⁹⁾⁻²¹⁾。もう一方は、十字の流路を用い、1 本の流路から分散相となる液体を流し、それに直交する 2 本の流路から連続相を流してジャンクション部で分散相を狭窄させて引きちぎる、十字ジャンクション (flow-focusing) 型^{22),23)}である。今回はよりシンプルな形状で液滴を生成可能な T 字ジャンクションを対象とした。

Fig. 1 Droplet formation mechanism at micro T-shaped junction.

Garstecki ら²⁴⁾、Menech ら²⁵⁾によると、T 字ジャンクションにおける液滴生成過程は粘性力と界面張力の比であるキャピラリ数 Ca に依存するとしており、 $Ca \sim 10^{-2}$ 付近を境に液滴の生成機構および生成される液滴サイズに変化が生じるとされている。キャピラリ数 Ca は次の式 (1) で示される。

$$Ca = F_{\tau} / F_{\gamma} = \mu u / \gamma \quad (1)$$

ここで、 μ : 連続相の粘度、 u : 連続相の代表速度、 γ : 界面張力である。Fig. 1 に示すように、分母の界面張力は界面面積を最小とするように働くのに対し、分子の連続相粘性力は界面を下流へ引きずり伸ばすように働くと考えられている。

低 Ca では界面張力 F_{γ} が粘性力に比して大きいため、連続相の粘性力に起因するせん断応力 F_{τ} によって界面が引きちぎられることはなく、分散相先端が流路をふさぐ事によって生じる上流側連続相の圧力上昇が液滴生成の直接の原因になると考えられている。この生成過程から、液滴形状は必然的に側面が流路壁に接した、流動方向に長いプラグ形状となる。また、せん断応力が支配的でない証拠として、このとき生成される液滴のサイズは流路形状から決まる定数と流量比のみで表される単純なスケール則の関数となることが示されている。連続相の圧力上昇により分散相の界面が絞られていくようなこの生成過程を Garstecki らは“squeezing”と呼び、高 Ca における生成機構と区別している。

一方、高 Ca では連続相の粘性力が支配的となり、分散相流路からジャンクションへ迫り出してくる界面に連続相が強いせん断応力を与え、それにより分散相先端が液滴に引きちぎられると考えられている。この生成過程は“dripping”と呼ばれ、分散相先端が流路を塞ぐ前に液滴が生成される特徴から、流路壁との接触が少ないほぼ球形の液滴が生じる。なお、これら squeezing と dripping の間には遷移領域があり、双方の生成過程が混在していると考えられている。

T 字ジャンクションにおける液滴生成機構に関する同様の検証は他にも多くなされており²⁶⁾⁻²⁸⁾、いずれも Ca を用いて現象の説明を試みているが、squeezing から dripping への生成過程の遷移はどの例も同じ Ca で起こるわけではない。つまりそれは、 Ca に含まれていないチャネル形状や壁面の濡れ性、分散相の流速・粘度などのパラメータが現象を定量的に説明するために必要である可能性を示しており、生成過程の解明をより困難なものとしている。しかし、流速分布の計測から得られる連続相のせん断応力や、各相の流動構造が重要な役割を果たしていることは明らかであり、流速分布の計測を可能とする本手法の開発によって、より深い現象の理解が進むものと期待される。

2. 計測手法

2.1 システム概要

計測システムを Fig. 2 に示す. 本システムは木下ら¹⁷⁾が開発した共焦点マイクロ PIV システムをベースに機能を拡張したもので, 2 つの異なる相を同時計測するために波長分離光学系を設計し, それを高速共焦点スキャナ (CSU22, Yokogawa Electric Corp.) と撮像デバイスとなる 2 台のハイスピードカメラ (Phantom v7.1, Vision Research Inc.) の間に設置している. 励起光は波長 488 nm の空冷アルゴンイオンレーザ (543-BS-A03, Melles Griot Inc.), および波長 532 nm のグリーン DPSS レーザ (Excel 1500, Laser Quantum Ltd.) の 2 本をレーザ結合器により同軸上に重ね合わせ, 共焦点スキャナ, 倒立顕微鏡 (DMIRE2, Leica Microsystems) を介して計測対象に照射する.

作動流体にはトレーサ粒子として蛍光ビーズを混入しており, レーザ光により照明された粒子の散乱光と蛍光が顕微鏡内で励起光路と同じ光路をたどって共焦点スキャナへ戻ってくる. 共焦点スキャナ内のニポウディスク間にはデュアルバンドのダイクロイックミラーを挿入し, 2 色の蛍光と分離しきれなかった散乱光がスキャナ出口から波長分離ユニットへと導かれる. 波長分離ユニットはそれぞれの相に分散しているトレーサ粒子の蛍光像のみの抽出と, カメラ素子サイズに合わせた倍率の調整を担っている.

Fig. 2 Schematic diagram of the multicolor confocal micro PIV System with a confocal scanner, wavelength separation unit and two lasers and high-speed cameras.

2.2 波長分離ユニットとカメラの調整

Figure 3 に波長分離ユニット内の光学素子配置と各波長の光路を示す. ユニット内にはミラーやフィルタ類を挟む形で収差の少ないアクロマティックレンズを配置し, これらは 2 つの重要な役割を担っている. 一つは, 共焦点スキャナ側コリメーティングレンズの焦点位置をスキャナの結像面に合わせ, カメラ側イメージングレンズの焦点位

置を高速カメラの素子面を合わせることににより, レンズ間の光路を平行光束とし, 波長に由来するフィルタ透過時の像のずれを防ぐ役割である. もう一つは, スキャナ側レンズとカメラ側レンズに F 値の異なるレンズを採用することにより, カメラの素子サイズに合わせて倍率を変えることである. 本実験ではスキャナ側に $F=100$, カメラ側 $F=200$ のレンズを用いる事により, スキャナ出口の像を 2 倍に拡大し, 空間解像度の向上を図っている.

共焦点スキャナから導かれた 4 色の光はコリメーティングレンズにより平行光束とされた後, ダイクロイックミラー (コート仕様 $R \geq 98$ at 510 nm, $T \geq 90$ at 560 nm, 入射角度 45° , Sigma Koki Corp.) により 2 色の蛍光の中間波長で分光される. 分光後, ロングパスフィルタ (RG630, Melles Griot Inc.) およびシングルバンドパスフィルタ (F-10-514.5-4, CVI Laser Inc.) によりレーザの散乱光をカットして, 2 色の蛍光のみが別々のカメラに記録される. これらフィルタ類は使用する照明や蛍光粒子の波長特性に応じて自由に変更することが可能となっている.

実際の計測の前には, カメラ 2 台の焦点および撮像位置を同一にするために, 対物マイクロメータ (OB-M#,1/100, Olympus) を撮影し, 光学素子とカメラ位置を調整する必要がある. 焦点合わせにはアクロマティックレンズをマウントしているレンズホルダの光軸方向調整機構および, カメラ台座に使用している xyz 軸精密ステージを用い, 画像を確認しながら行う. 撮像位置の調整も同様に, カメラ台座の微調整によって行うことができる. また, 画像の縦横比の調整には, ダイクロイックミラーおよび全反射ミラーのホルダ角度の微調整にて対応する.

Fig. 3 Schematic diagram of the multicolor separation unit and its optical design.

2.3 マイクロチャネルおよび作動流体

Figure 4 に今回の実験用に設計した, T 字ジャンクションマイクロチャネルを示す²⁹⁾. 流路は矩形断面を有し, 深さは $h = 25\ \mu\text{m}$, 幅は連続相・分散相ともに $w = 100\ \mu\text{m}$ である. チャネル材質は疎水性を持つ PDMS (Polydimethyl-siloxane) で覆われており, 水相と油相を流入させると, ジャンクション部で水滴が生成される.

チャネルは 2 箇所の流入口と 1 箇所の流出口を有し, 流入口への送液はガラスシリンジ (Gastight Syringes 1725LT, Hamilton Company) を装着した 2 台のシリンジポンプ (KDS100, KD Scientific Inc.) により駆動され, 体積流量をコントロールしている. シリンジとチャネル間は, 送液や液滴生成時の圧力変動に対して十分な強度を持つ内径 $0.5\ \text{mm}$, 外径 $1.5\ \text{mm}$ のテフロンチューブ (F-8006-02, FLON INDUSTRY) を長さ $10\ \text{cm}$ 用いて接続している.

作動流体は, PIV 計測の際の屈折による画像の変形を防ぐために, 屈折計 (NAR-1T, ATAGO Co., Ltd.) を用いて両相の屈折率をチャネル材質の PDMS と同じ 1.412 とした. 連続相には屈折率がちょうど PDMS と同じシリコンオイル (KF-6001, Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.) を用い, 分散相にはグリセリン水溶液を調製して用いた. そのときの蒸留水とグリセリンの混合比率は体積比で $1:1.21$ であった. なお, 共焦点画像においてチャネル壁面形状の経時変化が認められないことから, チャネル材質の PDMS への作動流体の膨潤は無いと考えられる. また, PDMS 表面には特別な処理は行っていない.

実験時のトレーサの混入や温度変化による屈折率, 粘度, 界面張力の変化を避けるため, 全ての実験はトレーサ混入後, 25°C の一定温度下にて実施している. 温度調整は室温および顕微鏡ステージに取り付けた恒温プレート (MD-10RF, Kitazato Supply Co., Ltd.) を用いて行っている.

Fig. 4 PDMS-based T-junction microchannel

2.4 蛍光トレーサ粒子

PIV 計測用のトレーサ粒子として, 油相にはフルオレsein で蛍光染色した $\phi 0.9 \sim 1.4\ \mu\text{m}$ シリカ粒子, 水相には $\phi 1.0\ \mu\text{m}$ Nile red 蛍光ポリスチレン粒子 (FluoSpheres F8819, Invitrogen-Molecular Probes Inc.) を用いた. それぞれの蛍光特性は, シリカ粒子がフルオレsein の吸収

ピーク $494\ \text{nm}$ ・蛍光ピーク $521\ \text{nm}$, ポリスチレン粒子が吸収ピーク $535\ \text{nm}$ ・蛍光ピーク $575\ \text{nm}$ である. Fig. 5 にレーザ波長および分離ユニットの光学素子と蛍光トレーサ粒子の波長特性を示す. 図に示すように, 各要素はトレーサ粒子を効率よく励起し, また蛍光を分離できるように選定している.

特に, 油相に分散できる市販粒子はいずれも蛍光強度が弱いので, シリカ粒子 (Godball E-2C, Suzuki Yushi Industrial Co., Ltd.) を蛍光染色することにより調製した. 調製にはまず, フルオレsein (Wako Pure Chemicals, Ltd.) をエタノールに飽和溶解させ, シリカ粒子を懸濁させて真空引きする. シリカ粒子は多孔質であり, 真空引きによって粒子内部まで染料を浸透させることで蛍光強度を高める効果がある. この粒子懸濁液を自然乾燥させたものを, 油相であるシリコンオイルに再分散させ, 蛍光粒子分散溶液とした.

オイルへの粒子再分散の際にも, 真空引きすることによって粒子内部へオイルを浸透させる. これには 2 つの目的があり, 1 つは, 多孔質粒子の低いかさ密度をオイルの比重に近づけることにより, 流れへの追従性を向上させること, もう 1 つは, 粒子内部および表面にオイルが保持されることにより, 粒子が水相に触れた際にシリカ表面が持つ親水性によって水相側へ引き込まれるのを防ぐためである. 液体内の粒子濃度はともに $0.4\ \text{vol}\%$ とした. また, これらの粒子は界面に接してもお互いにもう一方の相へ混入しないことをカラーカメラにより確認している.

Fig. 5 Absorption and emission profile of fluorescent particle and dye with wavelength characteristics of lasers and optical filters.

3. 計測結果および考察

3.1 予備実験による遷移 Ca 数の導出

Garstecki ら²⁴⁾が提唱する、液滴生成過程に変化が起こる遷移 Ca 数を調べるため、Garstecki らが用いている、Fig. 6 に示す液滴の流動方向長さ L_d を流路幅 W で除したパラメータを L_d/W 用いて Ca との関連性を調査した。作動流体は本実験と同じものを用い、分散相である水相に粘度と界面張力が変わらない程度の微量のウランを溶解させて界面形状を蛍光にて認識している。また、分散相先端の下流への伸びとちぎれた後の液滴の形状を取得するために、視野角 $942 \times 353 \mu\text{m}$ での低倍率にて撮影している。

Ca 数を変化させるために、分散相流量を $Q_d = 2 \mu\text{l/hr}$ に固定し、連続相流量を $Q_c = 4 \sim 48 \mu\text{l/hr}$ に変化させたところ、連続相流量の増加に伴い液滴のサイズパラメータ L_d/W が減少した。これを連続相の粘度 $44.1 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ および界面張力 11.1 mN/m を用いて Ca に換算し、プロットしたものを Fig. 7 に示す。また、参考までに液滴生成周期 t_{period} の Ca 依存性についても同図に併記した。サイズパラメータ L_d/W の変化率は $Ca = 5 \times 10^{-3}$ 近傍を境に急激に変化しており、さらにその値も 1 より小さくなることから、プラグ状液滴が球形液滴に変化していることが示された。また、同様に液滴生成周期 t_{period} の変化率も同様の $Ca = 5 \times 10^{-3}$ 近傍にて大きく変化している。よってこれらの計測結果より、今回の流路形状および条件のもとでは、液滴生成過程が squeezing から dripping に変化する遷移 Ca は 5×10^{-3} 近傍である。

Fig. 6 Size parameter of the droplet formation mechanism.

Fig. 7 Relationship between Ca number and droplet formation.

3.2 マイクロ PIV の計測条件

前節での予備実験の結果を踏まえ、遷移 Ca 数を境に $Ca = 3.53 \times 10^{-3}$ および 1.77×10^{-2} をそれぞれ squeezing と dripping に相当する条件として PIV 本実験の流量条件とした。条件の詳細を Table 1 に示す。

対物レンズは 40 倍の油浸レンズ (PL APO CS 40x / 1.25-0.75 HCX, Leica Microsystems) を用い、カメラの視野角は $228 \times 171 \mu\text{m}$ ($= 800 \times 600 \text{ pixel}$)、計測面内空間解像度は $0.285 \mu\text{m/pixel}$ であった。照明は対物レンズ出口でのレーザ強度が、それぞれ単独では 488 nm アルゴンイオンレーザが 3.3 mW 、 532 nm グリーン DPSS レーザが 3.1 mW であり、その 2 波長を同軸上に重ねて照射している。共焦点スキャナの回転速度は $5,000 \text{ rpm}$ 、カメラの撮影速度は 600 fps 、各フレームの露光時間は 1.66 msec に設定した。なお、本システムでは最高 $2,000 \text{ fps}$ までの撮影が可能であるが、油相用の自作蛍光シリカ粒子の蛍光強度が水相用の市販蛍光粒子より弱く、PIV 解析に十分な輝度を得るために、撮影速度を遅くして露光時間を長くしている。

共焦点マイクロ PIV の鉛直方向空間解像度である共焦点深度³⁰⁾は、粒子の深さ方向の輝度分布をガウス関数でフィッティングし、その半値全幅から求めた。同様の操作を 50 個の粒子に対して行い、平均値を算出した結果、連続相が $3.28 \mu\text{m}$ 、分散相は $3.35 \mu\text{m}$ であった。なお、本計測における計測断面の鉛直方向位置はちょうど流路の中央高さ ($z = 12.5 \mu\text{m}$) で統一している。

Table 1 Experimental condition

	連続相 (inlet A)	分散相 (inlet B)
作動流体	シリコンオイル	グリセリン水溶液
比重[g/cc]	0.98	1.16
粘度[mPa·s]	44.1	7.46
トレーサ	$\phi 0.9 \sim 1.4 \mu\text{m}$ 蛍光シリカ粒子	$\phi 1.0 \mu\text{m}$ 蛍光PS粒子
流量[$\mu\text{l/hr}$]	8.0	40.0
平均流速[mm/sec]	0.89	4.44
界面張力[mN/m]	11.1	
Ca 数	3.53E-03	1.77E-02

3.3 分光特性および PIV 画像の評価

Figure 8 にそれぞれのカメラで撮影された同時刻の PIV 画像を示す。ディスプレイ上で目視するには輝度の調整が必要であるが、カメラ素子の感度が良く、分解能も 12 bit あるため、粒子像は PIV 解析に十分な輝度を有している。

それぞれの相が画像内に占める領域が界面の変形と共に経時変化するため、PIV 解析の際にはまず解析すべき領域以外をマスキングして除外する必要がある。また、マスキングを行うことにより計算量を減らす利点もある。なお、蛍光粒子の波長特性に由来するクロストークにより、それぞれ反対の相にある粒子が暗く写り込んでしまうこ

とがあるが、本手法では、PIV 相関窓内の輝度値の平均を取り、それに適切な閾値を設けることで自動マスクングを実現している。

例として、Fig. 9 に、Fig. 8 の連続相（短波長側）画像に対して PIV 相関窓グリッドごとの平均輝度値をコンター表示した図を示す。この例では、解析領域の平均輝度値を 75 以上に設定することにより、適正なマスクング処理を施すことに成功している。

次に、画像の質について評価するために、Fig. 9 のマスクングされた解析領域に対して PIV 解析を行った例を Fig. 10 に示す。PIV 解析条件は相関窓サイズ 32×32 pixel の 50 %オーバーラップ、初期相関窓サイズ 96×96 pixel から 3 段階に相関窓を縮小させる階層的相互相関法により速度を算出している。解析した各相関窓グリッドの相互相関値の平均は 0.79 であり、画像の質は十分であると考えられる。また、分散相（長波長側）の画像でも相互相関値の平均は 0.88 と高い相関を示している。

Fig. 8 PIV images from two highspeed cameras.

Left: Camera 1 (Long wavelength: to-be-dispersed phase),

Right: Camera 2 (Short wavelength: continuous phase).

Fig. 9 Averaged intensity map for analytical area masking

Fig. 10 Sample of PIV result.

3.4 界面形状と連続相流速の過渡変化

Garstecki ら²⁴⁾によると、squeezing と dripping の液滴生成過程の違いは、ジャンクションに迫り出してくる分散相が連続相の通過領域を塞ぐか、あるいはその前に連続相のせん断応力により界面が引きちぎられるかの、分散相界面の過渡的な変化に見られるとされている。そこで、squeezing と dripping それぞれの生成過程の特徴を表すパラメータを選び、各パラメータの過渡変化を検証することで、液滴の生成過程の違いを考察する。

パラメータとしては、3つを設定した。まず、Fig. 6 に示すようなジャンクション近傍での連続相流路の壁と界面の最下端のギャップ距離 L_g 、および分散相流路部でのジャンクション上流側コーナーと界面の壁接触位置までの距離 L_c の各々を流路幅で正規化した L_g/W と L_c/W の2つのパラメータである。また、3つ目のパラメータは Fig. 6 に示された定点 A と定点 O における PIV から得られた速度の比 u_a/u_o である。なお、定点 A は squeezing と dripping の両方において、1周期中で連続相の速度変動が最も大きく、かつ分散相が通らず、連続相のみをモニタリングできる点として選択している。また、定点 O は定点 A より同じ y,z 座標点で x 軸に 2mm ほど上流の連続相流路内に位置する点であり、 u_o は定点 O の平均流速である。

各パラメータの1周期にわたる時間変動を Fig. 11 に示している。ここで、Fig. 11 の横軸は時間 t を、分散相が液滴に分裂する時刻を始点として、分裂するまでに要する1周期の時間 t_{period} で正規化している。なお、 t_{period} は squeezing 時で 0.46 sec, dripping 時で 0.14 sec であった。

ジャンクション部分での連続相の通過領域の大きさを示す L_g/W は、squeezing と dripping では減少率が異なる。Squeezing では、 L_g/W は周期前半の $t/t_{period} = 0.45$ 近傍まで急速に減少し、その後、減少率は緩やかになり、界面が分散相流路と対向する側の連続相流路壁に接触する $t/t_{period} = 0.94$ でゼロとなる。一方、dripping では L_g/W の減少率は最初は緩やかで段々と増加していくが、界面は分散相流路と対向する側の流路壁に接しないために、

ゼロにはならない。

L_g / W の減少に伴い、ジャンクション部分での連続相の速度を示す u_a / u_o は増加する。実際に Fig. 11 に示されているように、squeezing では $t / t_{period} = 0.4$ まで、dripping では $t / t_{period} = 0.77$ まで u_a / u_o は増加しており、squeezing の L_g / W の減少率の方が dripping より大きい。しかし、squeezing に見られるように分散相が連続相を完全にせき止める ($L_g / W = 0$) 前の $L_g / W = 0.45$ ($t / t_{period} = 0.4$) で u_a / u_o は減少に転じている。一方、dripping における u_a / u_o が減少に転じる時は $L_g / W = 0.6$ ($t / t_{period} = 0.77$) である。

L_c / W は squeezing, dripping ともに u_a / u_o のグラフをほぼ反転した形となっている。 L_c / W は初め、分散相の迫り出しを示す L_g / W の減少とともに減少することは想像できるが、 u_a / u_o の減少を境に増加に転じている。このことより、前段落で述べた u_a / u_o が減少に転じる L_g / W の値とも関連性があると考えられ、次節の PIV による流動構造の計測結果から検証を試みる。

Fig. 11 Evolution of interfacial geometry and velocity parameter at point A.

3.5 各位相での流動構造の違い

本節では、前節で観察したパラメータの変動を流動構造の視点から詳細に検証するため、PIV による速度場を比較する。一周を 11 の位相に分割し、それぞれの位相でのベクトルマップを Fig. 12 に並べて示す。図中の赤いベクトルが分散相、黒いベクトルが連続相の流動を表しており、また、界面形状の過渡変化も合わせて検証するために、赤の実線でその時刻での界面形状を、点線で 1 位相前の界面形状を示している。さらに、連続相通過領域の流速 u_a の計測点 A も図中に示した。

Fig. 12 Results of PIV measurement in each phase.

Left: Low Ca number (squeezing)Right: High Ca number (dripping)

Squeezing では Phase 1 から Phase 5 までは分散相の流入により, 界面がジャンクションへ向かって迫り出して L_g が減少し, その縮流部で連続相の流速が増加する. このとき分散相の流動は, 界面近傍は分散相より速い連続相の流速に引きずられる形で速度が大きくなるが, 中心部は界面近傍に比べて遅い. この傾向は dripping においても Phase 1 から Phase 8 近傍まで見られ, 周期全体の約 8 割を占めている. Phase 1 から Phase 6 までは squeezing よりも大きな連続相の流速に引きずられて分散相先端に渦構造を生じるが, 分散相の界面近傍の流速が中心部よりも大きい点は共通しており, 基本的な流動構造は同じである.

次に, squeezing の Phase 5 から Phase 9 では, L_g の減少率が低下する一方, 界面がジャンクション下流方向へ急速に伸展し, L_c が増加に転じる. それに伴ってジャンクション下流側コーナー部の分散相の通過領域が狭まる. その結果, 連続相は L_c 方向や分散相の通過領域が減少した箇所へと流れ込み, L_g 領域における流速は減少する. 一方, 分散相は界面近傍では連続相の減速を受けて減速するが, 逆に中心部は加速している. これは, 分散相の通過領域が狭まるのに対し, 流入流量はポンプで一定流量を与えられているためである.

一方, dripping の Phase 8 から Phase 9 にかけては, 界面がジャンクション下流方向へ急速に伸展し, L_c が増加に転じ, さらに連続相の L_g 領域の減速が起こる過程は squeezing と同じである. しかし, squeezing と異なり L_g の減少率は増加し続け, また, 連続相の減速にもかかわらず分散相内部の流速は中心部より界面近傍の方が大きい状態が続いている.

最後に, 分散相が液滴に分裂する直前の Phase 10 および分裂直後の Phase 11 における流動構造を検証する. Phase 10 では, squeezing, dripping とともにコーナー近傍の界面に分散相側に凹みが生じて分裂が始まる. 分散相内コーナー部の流速は通過領域の縮小に伴って Phase 9 よりもさらに加速する. 分裂直後の Phase 11 では, 分裂した 2 つの界面がそれぞれお互いに離れていく. この動きによって, 連続相は離れていく 2 つの界面間を埋めるようにジャンクション下流側コーナー部に集中する流れを生じる. よって, Phase 10 以降の分裂の過程では squeezing, dripping とともに同様の流動構造を持つ.

上述の流動構造の検証から, squeezing, dripping とともに液滴生成過程は 3 つのステージに分けることができると考察される. まず 1 つ目のステージは squeezing における Phase 1 から Phase 5 まで, および dripping における Phase 1 から Phase 8 までである. ここでは, 分散相の迫り出しによる L_g の減少に伴って連続相が加速し, 界面を介して分散相内部の界面近傍における流速の増加が見られる. これを分散相の迫り出しになぞらえて growing ス

テージとする.

2 つ目のステージは流動構造の記述にもあるように, squeezing と dripping では様相が異なる. squeezing に関しては, Garstecki らによる同様の条件下での数値解析²⁴⁾によると, 点 A 近傍の連続相圧力は L_g がゼロになる前の時点で $L_g = 0$ 時の最大圧力とほぼ同等にまでに上昇することが示されている. それを踏まえ, 本実験の Phase 5 から Phase 9 では, L_g が減少して連続相の通過領域を狭め, L_g がゼロになる前に L_g 領域の連続相流速は減少している. よってその結果, 連続相の圧力が上昇し, L_c の増加および分散相の通過領域の狭まりを引き起こすと考えられる. よってこのステージを, 連続相の圧力上昇が界面を分散相側に押す力を強めるという意味で, pressured ステージとする.

dripping における 2 つ目のステージである Phase 8 から Phase 9 に関しては, 3.4 節のパラメータスタディにおいて u_a / u_o が減少に転じる時の L_g / W が squeezing より大きいこと, また, 流動構造においても連続相の減速にもかかわらず分散相内部の流速が中心部より界面近傍の方が大きいことから, squeezing の pressured ステージと比較して連続相圧力の作用が弱く, 連続相によるせん断応力が界面をジャンクション下流方向へ伸展させていると考えられる. よってこのステージを shearing ステージとする.

3 つ目のステージは, 界面が分散相側へ凹んで液滴が生成される Phase 10 以降である. このステージでは伸ばされた界面が Plateau-Rayleigh の不安定性により, 表面積を最小化しようと自発的に液滴に分裂する作用³¹⁾が支配的であると考えられ, squeezing, dripping とともに同じ過程であると考えられる. よってこのステージを pinch-off ステージとする.

4. 結論

多波長分離光学系を有する共焦点マイクロ PIV システムを構築し, これを用いてマイクロ T 字ジャンクションにおける非混和液体の液滴生成過程の計測を試みた. 以下に, 本研究において達成した事項を列記する.

- ・ 油相と水相双方のみに分散することができるトレーサ粒子を開発し, 2 色の励起光を用いて 2 色の蛍光を発生させ, それを光学的に分離して両相の同時計測を可能とした.
- ・ 本 PIV 計測では, 従来の形状パラメータである界面形状や液滴サイズ以外に両相の流速分布を得る事により, 形状パラメータと流動構造の関連性を明らかにすることができた.
- ・ PIV 計測により, 連続相と分散相の速度 2 成分の空間分布とその時間変動を定量的に把握することが可能

となった.

- ・ 今後 3 次元計測を実現することにより, 界面張力およびせん断応力を含めた定量的な評価へと発展させることができると考えられ, 本手法は液滴生成過程の定量的解明への道筋を示したといえる.
- ・ 液滴生成の過程は squeezing と dripping 共に, 3 つのステージに分けることができると考えられる. 1 つ目と 3 つ目のステージ squeezing と dripping とでは共通しており, 1 つ目は growing, 3 つ目は pinch-off ステージと言える. その中間ステージにおいては squeezing は圧力が支配的であるため pressured ステージ, dripping ではせん断応力が支配的であるため shearing ステージに分けられる.

ただし, さらなる定量的な考察を行うためには, 界面の 3 次元形状および 3 次元流動場の情報や壁面の濡れ性の検証が必要である. 本実験における共焦点マイクロ PIV は 2 次元計測であるため, 液滴生成周期を取得して異なる高さ断面の同位相計測を実現する手法を開発しなければならない. その後, 3 次元流動場の再構築などにより, 3 次元流速分布の取得と定量的なメカニズム解明を試みる予定である.

謝 辞

本研究は文部科学省科学研究費補助金・若手研究(B), 17760134 の援助を受けて実施した. ここにそれを記し, 謝意を表する.

参 考 文 献

- 1) Reyes, D. R., Iossifidis, D., Auroux, P., Manz, A. : Micro total analysis systems. 1. Introduction, theory, and technology, Anal. Chem., Vol.74 (2002) pp.2623-2636.
- 2) Auroux, P. A., Iossifidis, D., Reyes, D. R., Andreas, M. : Micro total analysis systems, 2. Analytical standard operations and applications, Anal. Chem., Vol.74 (2002) pp.2637-2652.
- 3) Whitesides, G. M. : The origins and the future of microfluidics, Nature, Vol.442 (2006) pp.368-373.
- 4) Psaltis, D., Quake, S. R., Yang, C. : Developing optofluidic technology through the fusion of microfluidics and optics, Nature, Vol.442 (2006) pp.381-386.
- 5) Tice, J. D., Song, H., Lyon, A. D., Ismagilov, R. F. : Formation of droplets and mixing in multiphase microfluidics at low values of the Reynolds and the Capillary Numbers, Langmuir, Vol.19 (2003) pp.9127-9133.
- 6) Song, H., Tice, J. D., Ismagilov, R. F. : A microfluidic system for controlling reaction networks in time, Angew. Chem. Int. Edit., Vol.42, No.7 (2003) pp.768-772.
- 7) Garstecki, P., Fuerstman, M. J., Fischbach, M. A., Sia,

- S. K., Whitesides, G. M. : Mixing with bubbles: a practical technology for use with portable microfluidic devices, *Lab on a Chip*, Vol.6 (2006) pp.207-212.
- 8) He, M., Edgar, J. S., Jeffries, G. D. M., Lorenz, R. M., Shelby, J. P., Chiu, D. T. : Selective encapsulation of single cells and subcellular organelles into picoliter- and femtoliter-volume droplets, *Anal. Chem.*, Vol.77, No.6 (2005) pp.1539-1544.
- 9) Chen, D. L., Gerdtts, C. J., Ismagilov, R. F. : Using microfluidics to observe the effect of mixing on nucleation of protein crystals, *J. Am. Chem. Soc.*, Vol.127, No.27 (2005) pp.9672-9673.
- 10) Nisisako, T., Torii, T., Higuchi, T. : Novel microreactors for functional polymer beads, *Chemical Engineering Journal*, Vol.101 (2004) pp.23-29.
- 11) Xu, S., Nie, Z., Seo, M., Lewis, P., Kumacheva, E., Stone, H. A., Garstecki, P., Weibel, D. B., Gitlin, I., Whitesides, G. M. : Generation of monodisperse particles by using microfluidics: Control over size, shape, and composition, *Angew. Chem.*, Vol.117 (2005) pp.734-738.
- 12) Zourob, M., Mohr, S., Mayes, A. G., Macaskill, A., Pérez-Moral, N., Fielden, P. R., Goddard, N. J. : A micro-reactor for preparing uniform molecularly imprinted polymer beads, *Lab on a Chip*, Vol.6 (2006) pp.296-301.
- 13) Santiago, J. G., Wereley, S. T., Meinhart, C. D., Beebe, D. J., Adrian, R. J. : A particle image velocimetry system for microfluidics, *Exp. Fluids*, Vol.25 (1998) pp.316-319.
- 14) Meinhart, C. D., Wereley, S. T., Santiago, J. G. : PIV measurements of a microchannel flow, *Exp. Fluids*, Vol.27 (1999) pp.414-419.
- 15) Yoon, S. Y., Kim, J. M., Kim, K. C. : Both internal and external flow fields measurements in and around a micro-droplet formed in a microchannel, *Proc. of Micro Total Analysis Systems (μ TAS) 2005*, Vol.1 (2005) pp.626-628.
- 16) Park, J. S., Choi, C. K., Kihm, K. D. : Optically sliced micro-PIV using confocal laser scanning microscopy (CLSM), *Exp. Fluids*, Vol.37 (2004) pp.105-119.
- 17) Kinoshita, H., Oshima, M., Kaneda, S., Fujii, T. : Confocal micro PIV measurement of internal flow in a moving droplet, *Proc. of Micro Total Analysis Systems (μ TAS) 2005*, Vol.1 (2005) pp.629-631.
- 18) Oishi, M., Kinoshita, H., Oshima, M., Kobayashi, K. : Multicolor confocal micro PIV system for multiphase flow measurement, *Proc. of 12th International Symposium on Flow Visualization (ISFV12)*, No.223 (2006).
- 19) Thorsen, T., Roberts, R. W., Arnold, F. H., Quake, S. R. : Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device, *Physical Review Letters*, Vol.86, No.18 (2001) pp.4163-4166.
- 20) Nisisako, T., Torii, T., Higuchi, T. : Droplet formation in a microchannel network, *Lab on a Chip*, Vol.2 (2002) pp.24-26.
- 21) Tice, J. D., Lyon, A. D., Ismagilov, R. F. : Effects of viscosity on droplet formation and mixing in microfluidic channels, *Anal. Chim. Acta.*, Vol.507 (2004) pp.73-77.
- 22) Ward, T., Faivre, M., Abkarian, M., Stone, H. A. : Microfluidic flow focusing: Drop size and scaling in pressure versus flow-rate-driven pumping, *Electrophoresis*, Vol.26, No.19 (2005) pp.3716-3724.
- 23) Takeuchi, S., Garstecki, P., Weibel, D. B., Whitesides, G. M. : An axisymmetric flow-focusing microfluidic device, *Advanced Materials*, Vol.17, Issue 8 (2005) pp.1067-1072.
- 24) Garstecki, P., Fuerstman, M. J., Stone, H. A., Whitesides, G. M. : Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction - scaling and mechanism of break-up, *Lab on a Chip*, Vol.6 (2006) pp.437-446.
- 25) Menech, M. D., Garstecki, P., Jousse, F. : Transition from squeezing to dripping in a microfluidic T-shaped junction, *J. Fluid Mech.*, Vol.595 (2008) pp.141-161.
- 26) van der Graaf, S., Steegmans, M. L. J., van der Sman, R. G. M., Schroën, C. G. P. H., Boom, R. M. : Droplet formation in a T-shaped microchannel junction: A model system for membrane emulsification, *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, Vol.266 (2005) pp.106-116.
- 27) van der Graaf, S., Nisisako, T., Schroën, C. G. P. H., van der Sman, R. G. M., Boom, R. M. : Lattice Boltzmann Simulations of Droplet Formation in a T-Shaped Microchannel, *Langmuir*, Vol.22, (2006) pp.4144-4152.
- 28) Xu, J. H., Li, S. W., Tan, J., Luo, G. S. : Correlations of droplet formation in T-junction microfluidic devices: from squeezing to dripping, *Microfluid Nanofluid*, Vol.5, (2008) pp.711-717.
- 29) Hong, J. W., Hosokawa, K., Fujii, T., Seki, M., Endo, I. : Microfabricated Polymer Chip for Capillary Gel Electrophoresis, *Biotechnology Progress*, Vol.17, Issue 5 (2001) pp.958-962.
- 30) Kinoshita, H., Kaneda, S., Fujii, T., Oshima, M. : Three-dimensional measurement and visualization of internal flow of a moving droplet using confocal micro-PIV, *Lab on a Chip*, Vol.7 (2007) pp.338-346.
- 31) De Gennes, P. G., Brochard-Wyart, F., Quere, D. : *Capillarity and Wetting Phenomena: Drops, Bubbles, Pearls, Waves*, Springer (2003) pp.10-11.