

令和元年6月13日現在

機関番号：34416

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06095

研究課題名(和文) マイクロフルイデクスにおける表面張力効果を利用した液操作技術の検討

研究課題名(英文) Study of droplet manipulation utilizing surface tension effect in microfluidics

研究代表者

山本 恭史 (Yamamoto, Yasufumi)

関西大学・システム理工学部・教授

研究者番号：90330175

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、流体を利用する微小装置であるマイクロフルイデクスにおいて、液操作のための技術として有効な表面張力に関する現象(濡れ性の制御、エレクトロウェットティング(EW)、マランゴニ効果)について、その現象を数値流体力学で表現するためのモデリングを行うことを目的として行われた。(1) EWについて、経験式を用いたシミュレーションにより他者の実験を再現できた。(2) 電場の方程式を解いて電気力を表現することで、電場中の液滴のシミュレーションが可能になった。経験式を用いずにエレクトロウェットティングが再現できる手ごたえを得た。(3) その他、濡れ現象のシミュレーションが高精度に行えるようになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

micro-TAS等のマイクロ流体素子における液操作の工学プロセスにおいて、現象の予測と制御が可能となること学術的特色・独創的な点である。表面張力が支配的な流体現象における、各表面張力関連現象が系全体の挙動に与える影響などを定量的に明らかにできるシミュレーションコードが開発できた。このコードを用いてシミュレーションを行えば、効率的な液面・液滴操作技術の飛躍的な向上が期待できる。また、工学的応用に限らず、本研究の主題は「表面張力が支配する微小スケールでの流体現象」という流体力学の重要分野に直接関連するものであり、その学術的普遍性は極めて大きい。

研究成果の概要(英文)：This study was performed to model surface-tension-related phenomena (wettability control, Electrowetting, Marangoni effect) from the perspective of computational fluid dynamics. The surface-tension related phenomena are effectively utilized as techniques to operate a liquid in the microfluidics devices.

(1) About electrowetting, experimentally observed droplet manipulation could be reproduced by our simulation code by using an empirical relation. (2) The simulation of droplet flow in electric field was enabled by solving the equation of the electric field and expressing electric force. Then, we obtained possibility that electrowetting phenomena could be reproduced without the empirical relation. (3) In addition, the accuracy of wetting simulations was highly improved.

研究分野：流体工学

キーワード：流体工学 混相流 表面張力 微小スケール 濡れ性 エレクトロウェットティング 電気流体力学

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2004 年の「Lab-on-a-Chip に向けたマイクロフルイデクス」というサブタイトルのついた Stone らのレビューで、その時点での微小デバイスにおける工学的な流れの研究について概観されていた。また、Lab on a Chip という雑誌でも、例えば、2008 年には Teh らにより液滴のマイクロフルイデクスについてのレビューが掲載されていた。このことから分かるように、 μ -TAS (micro Total Analysis System) のようなマイクロチップ上のシステム開発のため、マイクロフルイデクスの研究は非常に注目されていた。しかし、Stone らのレビューで紹介されている論文は、ほとんどが実験が簡単な理論による研究であり、詳細な数値シミュレーションはなされていないし、Lab on a Chip に掲載されている論文に関しては、装置の材質や形状等の技術的な研究が多く、流体力学的に十分な考察がなされていない。マイクロスケールの流体に関して、特に電場により濡れ性を变化させるエレクトロウエットングについては、lab on a chip を可能にする技術として非常に注目されていた。よって、マイクロフルイデクスにおける液滴の操作について、流体力学的観点から詳細な数値シミュレーションモデルを構築することが出来れば、この流れをさらに発展させることが出来ると考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、微小スケールにおける液操作について特に表面張力と濡れ性に着目して、有効な液滴操作方法・条件について、数値解析によって解明することである。

流体に作用する力は、長さスケールが小さくなると、体積力(重力・浮力)・面積力(圧力・粘性摩擦)に比べて、長さあたりの力である「表面張力」の影響が相対的に大きくなる。その状況で、温度勾配が生じれば、表面張力の不均質による流動(マランゴニ効果)が、また、固体面上での表面張力の影響が濡れ性として現れるが、温度変化や電気的な影響が固体表面の濡れ性に影響を及ぼす。そこで、本研究では、数値解析により、これら表面張力に関連する各要素の相互作用を検討し、実用的な液操作に関する重要な知見を得ることを目的とした。また、その数値計算の基礎としている動的濡れを表現するモデルについても高精度化・汎用化を検討した。

3. 研究の方法

本研究では、具体的に次のような項目に関して、数値解析モデルの開発とシミュレーションを行った。

(1) 温度操作による液滴駆動のシミュレーション

液滴駆動制御手法の1つとして、微小液滴の一部にレーザーを照射し局所的な温度変化を与え、部分的に濡れ性を向上させることで液滴を駆動させる手法が提案されている。我々のグループでは、濡れ性と表面張力を温度依存としたシミュレーションにより駆動様式のしきい条件について検討していたが、実験では照射された液滴が非常に高温になっていることが確認された。そこで、液滴の物性(密度・粘度・比熱・熱伝導率)を温度依存として計算を行ったところ、密度を温度依存物性として与えると、物性の温度変化がない場合と比べて2倍以上駆動距離が伸びる結果となった。しかし、この計算は非圧縮性流体を仮定しつつ、温度に応じて密度を変化させていたため、この矛盾を解決することが課題となっていた。

そこで、圧縮性・非圧縮性流体を統一的に扱える TCUP 法の枠組みで Front-tracking 法のコードを再構成した。そのコードを用いて密度の温度依存性を検討した。

(2) 経験式を用いたエレクトロウエットングの数値シミュレーション

濡れ性を電場により変化させるエレクトロウエットング(EW)は、制御のしやすさと省消費電力の点で期待されている技術である。Lu らは、狭小平板間における液移動・液分裂の実験と2次元シミュレーションを行っているが、時間応答が実験と合わず、パラメータを調整しても分裂が速すぎるか分裂しない結果しか得られなかった。Hele-Shaw モデルによる2次元近似では速度は圧力勾配のみによって決まるため、濡れの影響を圧力境界条件の形で表現する必要がある。Lu らは EW 効果を含む濡れ性の影響を1つのパラメータでモデル化した2次元計算を行ったため、実験と時間応答が合わない結果しか得られていない。我々のグループは、これまで動的な濡れ性を精度よく表現するシミュレーションモデルを開発し、3次元化を行ってきた。そこで、Lu らの実験に対する3次元 Front-tracking 法によるシミュレーションを行い、移動や分裂に関して実験結果の液滴形状、移動速度や角度変化の時間スケールを精度よく再現できるかを検討した。

(3) 3次元シミュレーションの分析結果に基づく2次元モデル開発

上記(2)のシミュレーションデータを詳細に分析することで、簡易な2次元シミュレーションで、実験を再現できるかを検討した。狭い流路内での2次元シミュレーションでは表現できない、2次元面に垂直な方向の曲率を与えるモデルを開発した。

(4) 高速な濡れモデルの開発

流体力学において、一般的に固体面は滑り無し境界(固体面に対する相対速度が0)で表す

が、滑り無し境界では接触線が動かず接触線近傍の粘性応力が発散する．このような接触線移動問題に対して、我々は、Qian ら が分子動力学シミュレーション結果から導出した一般化ナビエ境界条件(GNBC)を、Front-tracking 法に組み込んだ GNBC-Front-tracking を提案している．接触線移動モデルに GNBC-Front-tracking を用いて動的接触角から接触線移動速度を求めることで、分子の滑りによる低速な濡れ挙動を妥当に表せる．しかし、GNBC-Front-tracking は液滴が固体面へ衝突する際に生じる勢いによる、高速な濡れ広がりを再現できない．高速に濡れ広がるような場合は、接触線の上側の流体塊が接触線を超えて新たに壁面と接触することで、接触線の位置が進むということが起きているはずである．我々のグループでは GNBC-Front-tracking に加えて高速な濡れ広がりを表現するための液塊回転モデルを併用した接触線移動モデルを開発してきた．しかし接触のための閾値という数値計算上の追加パラメータや、濡れ広がる勢いが小さくなった時点で液塊回転モデルを無効にし GNBC-Front-tracking のみで遅い濡れを表すため、モデルの切替という数値計算上の操作も必要となり、汎用性が無いという問題があった．

そこで、新しい境界条件モデルを検討した．一般的に用いられる壁面の非浸透条件では、壁面近傍マーカーが固体面付近で速度を持ってない．そうするとマーカーは固体面に接触出来ないため、以前の液塊回転モデルでは、壁面から閾値以内にマーカーが入るとそれを強制的に接地させて新たな接触線としていた．Lukyanov と Pryer は分子動力学シミュレーションの結果に基づき、液塊の回転を適切に表現するため、非浸透条件を緩和した壁面境界条件を提案している．非浸透条件を緩和した壁面境界条件を用いると、壁面近くのマーカーが壁垂直方向の速度を持つことが可能になる．これにより、マーカーが固体面に自然に接地できるようになると考えて Front-tracking コードに組み込んだ．微分方程式で表される境界条件式の具体的な表現方法について詳細に検討し、より汎用性のある接触線移動モデルの検討を行った．

(5) 電気流体力学シミュレーション

前述の(2)では、壁面の濡れ性変化は Young-Lippmann 式と呼ばれる半経験式を用いて与えているが、エレクトロウエット現象そのものが、本当に濡れ性が変化しているのか、濡れ性が変化しているように見えるだけなのかという議論がある．実験では電圧の上昇とともに、Young-Lippmann 式が成立せずに接触角変化が飽和することが報告されているが、Young-Lippmann 式に基づいたシミュレーションでは、その濡れ性の飽和も表現できない．その表現には、固体壁面の絶縁層や液滴の電気的な特性を考慮に入れなければならないため、この現象を電気流体力学の問題として扱う必要がある．そこで、本研究では、マクスウェル方程式から電場を解き、電気力を直接評価する 3 次元のシミュレーションコードを作成し、それを 3 次元の Front-tracking コードに組み込むことで半経験式を用いない電気流体力学シミュレーションコードの開発を試みた．開発中のコードの妥当性を丁寧に検討した．

4．研究成果

上記の方法により得られた成果を次に述べる．

(1) 温度操作による液滴駆動のシミュレーション

液滴の一部を加熱し、濡れ性変化により駆動する方法について、物性の温度依存の影響を検討するため、TCUP 法の枠組みで Front-tracking 法のコードを再構成し、圧縮性に対応したコードを作成した．ただし、界面張力項に起因するノイズの影響が大きいことが分かったため、それを抑えるアルゴリズムの工夫を行った．開発コードを用いて密度変化を与えた計算を行い、密度一定の場合の計算と比較検討した．その結果、密度変化を与えた場合は密度一定の場合と比べて、液滴駆動開始時に生じる加速度が 3 倍程度大きいことが分かった．結果についてはさらなる検討が必要であるが、シミュレーションコードが圧縮性に対応し、汎用性が高まった．

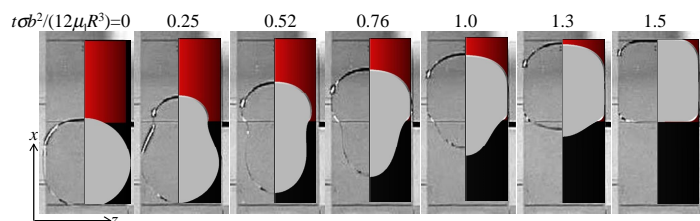


図 1 Hele-Shaw 系のエレクトロウエットによる液滴移動の結果．時間が左から右へ進む．各図の左が実験結果、右がシミュレーション結果．

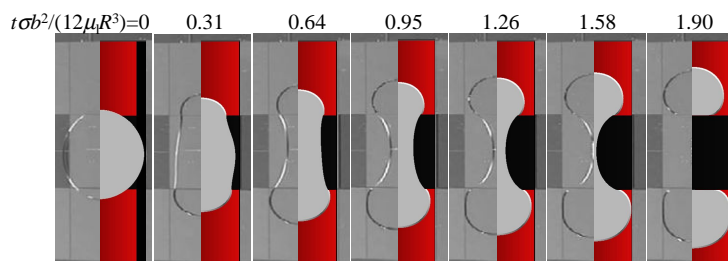


図 2 Hele-Shaw 系のエレクトロウエットによる液滴分裂の結果．

(2) 経験式を用いたエレクトロウェットングの数値シミュレーション

Hele-Shaw 系のエレクトロウェットングによる液滴操作に関して、Front-tracking 法による 3 次元の流動シミュレーションを行った。3 次元シミュレーションにより、接触角の時間変化や流路厚み内の速度分布が表現出来、本モデルで実験をよく再現出来た。また、形状および移動・分裂の時間スケールが、実験とよく一致した(図 1, 2)。また、液滴移動のダイナミクスを記述した理論モデルを考案した。複数のパラメータを変更してシミュレーションした結果、定常状態の液滴移動速度は、理論モデルと概ね一致し、電極幅、液半径、流路幅等の影響を 1 つの無次元数にまとめることが出来ることが分かった。

この成果は、流体力学分野で世界的権威のある雑誌 Journal of Fluid Mechanics に掲載された。

(3) 3 次元シミュレーションの分析結果に基づく 2 次元モデル開発

Hele-Shaw セル内でのエレクトロウェットングによる液滴分裂を 2 次元シミュレーションで再現するために、3 次元シミュレーションデータを詳細に分析した。3 次元データから曲率と動的接触角を抽出し、分布を確認した。電極上では曲率 0 を仮定し、電極外では体積保存を条件として 2 次元計算では得られない情報を表現するモデルを構築した。考案した 2 次元モデルにより動的接触角を求め、電極上、電極外のそれぞれで 3 次元データと比較したところ、良い一致が得られた。現在、そのモデルを基に 2 次元コードの開発中である。

(4) 高速な濡れモデルの開発

高速な濡れを再現するため非浸透条件を緩和した新たな境界条件を適用した結果、次のことが分かった。マーカーが壁面に接地するのを表現できるようになったことで、以前までの問題であった閾値の調整が不要になった。また、液体運動の慣性が小さくなると浸透速度も自動的に小さくなるため、自動的に液塊回転モデルが効かなくなり、モデルの切替を組み込む必要が無くなった。固体面に液滴を衝突させるシミュレーションを行った結果、図 3 に示すように解像度によらず非常によく実験を再現できることが分かった。

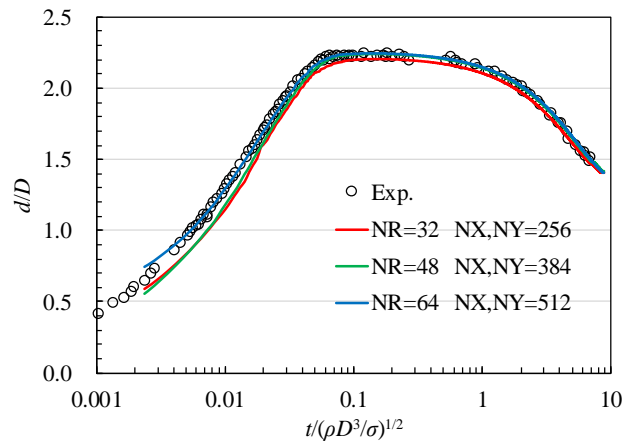


図 3 壁面に衝突する液滴の濡れ直径の時間変化。

(5) 電気流体力学シミュレーション

電気力を直接評価する電気流体力学 (Electrohydrodynamics, EHD) コードを作成し、EHD コードの計算結果と他者の理論と比較した。EHD コードの計算結果が理論解の高次項まで考慮したものと非常によく一致したことから流体力・表面張力と電気力のバランスが適切に評価されていると考えられる。エレクトロウェットングの表現のために、そのコードを液滴が電極に接する場合に対応できるように発展させた。最初は気液界面のみの帯電を考慮したシミュレーションを行ったが、濡れ性の変化は全く表現できておらず、気液界面の帯電より固液界面の帯電を適切に表現すべきであることが分かった。現時点で、固体部分も含めて電場の計算を行うコードを開発できたが、今後は固液界面の帯電の影響を流体計算にどのように反映していくか計算方法の検討が必要であることが分かり、今後の展開に期待が持てる。

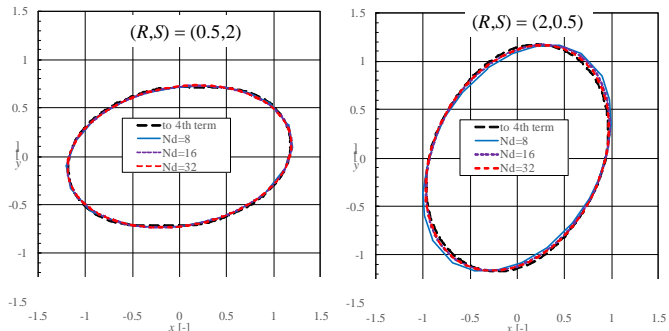


図 4 電気流体力学シミュレーションコードで再現されたせん断流れと一様電場中の液滴形状の理論との比較。左は内部が導電性が高く、右は外部の導電性が高い場合。

< 引用文献 >

- H. A. Stone, A. D. Stroock, A. Ajdari, Engineering flows in small devices: microfluidics toward a lab-on-a-chip, Annual Review of Fluid Mechanics, Vol.36, 2004, 381-411.
- S-Y. The, R. Lin, L-H. Hung, A. P. Lee, Droplet microfluidics, Lab on a Chip, Vol.8, 2008, 198-220.

R. B. Fair, Digital microfluidics: is a true lab-on-a-chip possible?, *Microfluidics and Nanofluidics*, Vol.3, 2007, 245-281.

H.-W. Lu, K. Glasner, A. L. Bertozzi, C.-J. Kim, A diffuse-interface model for electrowetting drops in a Hele-Shaw cell, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol.590, 2007, 411-435.

T. Qian, X. P. Wang and P. Sheng, Molecular scale contact line hydrodynamics of immiscible flows, *Physical Review E*, Vol. 68, 2003, 016306-1-016306-15.

A. V. Lukyanov, T. Pryer, Hydrodynamics of Moving Contact Lines: Macroscopic versus Microscopic, *Langmuir*, Vol.33, 2017, 8582-8590.

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

Yasufumi Yamamoto, Takahiro Ito, Tatsuro Wakimoto, Kenji Katoh, Numerical and theoretical analyses of the dynamics of droplets driven by electrowetting on dielectric in a Hele-Shaw cell, *Journal of Fluid Mechanics*, 査読有, Vol.839, 2018, pp.468-488.

DOI: 10.1017/jfm.2018.16

〔学会発表〕(計 9 件)

相坂享佑, 山本恭史, 大友涼子, 田地川勉, 板東潔, Hele-Shaw セル内でのエレクトロウエッティングの 2 次元近似モデルの開発, 日本機械学会関西学生会 2018 年度学生員卒業研究発表講演会, 2019 .

川上耕平, 山本恭史, 大友涼子, 田地川勉, 板東潔, 高速な濡れを再現する非浸透条件緩和モデルの検討, 日本機械学会関西学生会 2018 年度学生員卒業研究発表講演会, 2019 .

宮本和真, 山本恭史, エレクトロウエッティングによる液滴操作の電気流体力学シミュレーション, 混相流シンポジウム 2018, 2018 .

山本恭史, 大西祐司, 大友涼子, 伊藤高啓, 脇本辰郎, 加藤健司, エレクトロウエッティングによる狭小平板間における液操作のシミュレーション, 混相流シンポジウム 2016, 2016 .

山本恭史, 大友涼子, 伊藤高啓, 脇本辰郎, 加藤健司, エレクトロウエッティングによる Hele-Shaw セル内 液滴運動の Front-tracking シミュレーション, 可視化情報学会全国講演会 (室蘭 2017), 2017 .

山本恭史, 加藤健司, 大友涼子, 脇本辰郎, 伊藤高啓, エレクトロウエッティングによる Hele-Shaw セル内液滴運動の数値解析, 混相流シンポジウム 2017, 2017 .

宮本和真, 山本恭史, 大友涼子, 田地川勉, 板東潔, エレクトロウエッティングによる液滴操作の電気流体力学シミュレーション 界面近傍の物性の与え方に関する検討, 日本機械学会関西学生会平成 28 年度学生員卒業研究発表講演会, 2017 .

坂口耕平, 山本恭史, 大友涼子, 伊藤高啓, 脇本辰郎, 加藤健司, 温度操作による液滴駆動のシミュレーション (TCUP 法による密度変化への対応), 第 30 回数値流体力学シンポジウム, 2016 .

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www2.itc.kansai-u.ac.jp/~yamayasu/>

6 . 研究組織

(1)研究分担者

なし

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。