

# 粘性流体中での誘電泳動による液体輸送

鳥羽商船高専\*，東京大学機械工学専攻\*\*，ロチェスター大学\*\*\*，  
伊藤友仁\*，軍司昌秀\*\*，鷲津正夫\*\*，T.B.ジョーンズ\*\*\*

\*三重県鳥羽市池上町 1 1 \*\*東京都文京区本郷 7 3 1

\*\*\*米国ニューヨーク州ロチェスター市

## DPE liquid actuation in viscous fluid

Tomohito ITO\*, Masahide GUNJI\*\*, Masao WASHIZU\*\* and T.B. JONES\*\*\*

\*Department of Maritime Technology, Toba National College of Maritime Technology

\*\*Department of Mechanical Engineering, The University of Tokyo

\*\*\*Department of Electrical and Computer Engineering, University of Rochester

The dielectrophoretic (DEP) force acting on a liquid provides a controllable means for rapid movement and dispensing of small liquid volumes on a substrate. Microliter volume of water deposited on an insulating layer that covers the coplanar electrodes forms a protrusion that runs along the electrode gap when the voltage is applied, and is subdivided into small droplets when the voltage is turned off. It has been reported that the evaporation of water can be avoided by immersing the system into oil, but no quantitative study has been made on the DEP motion in such a viscous medium. In this paper, a two-dimensional model of the liquid protrusion motion is developed first, taking into the viscous drag exerted by the viscous medium. Then experiments are conducted using silicone oil with various viscosities as the medium, and the position of the protrusion front is measured as a function of time. Good agreements between the experimental and the calculated value are observed when the medium viscosity is below 100 centi-Stokes. However, at higher medium viscosity, the speed was found to be smaller than that predicted by the theory. The discrepancy is attributable to the viscous force at the protrusion front, which is not included in the 2D model.

### 1. はじめに

$\mu$ -TAS(Micro Total Analysis System)は化学分析装置や反応装置を小型化して一つの基板上に集積したもので、分析試料の低減、反応時間短縮、装置の携帯化等を可能とする。その応用分野はバイオテクノロジーやファインケミカルなどが考えられ実用化が期待されている。 $\mu$ -TAS においては、液体試料を微量取り出して目的の場所に輸送したりすることが必要である。その方法のひとつとして誘電泳動(dielectrophoresis: DEP)を利用して少量の液体を別の場所輸送する DEP マイクロアクチュエーションがある<sup>1,2)</sup>。これはガラス基板上にパターニングした電極によって得られる不平等電界を利用し、誘電泳動力によって微小液体輸送するものである。

図1に示すように、基板上にある平行平板電極の一端に試料溶液を置き、電極に電圧を印加する

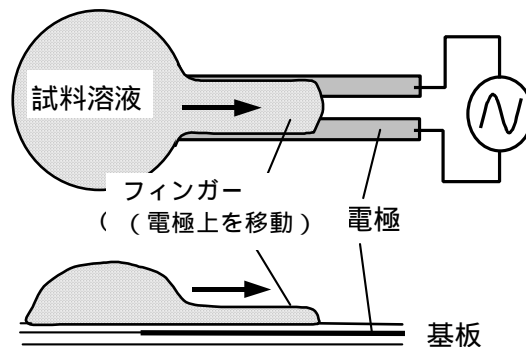


図1 平行平板電極上の液の誘電泳動

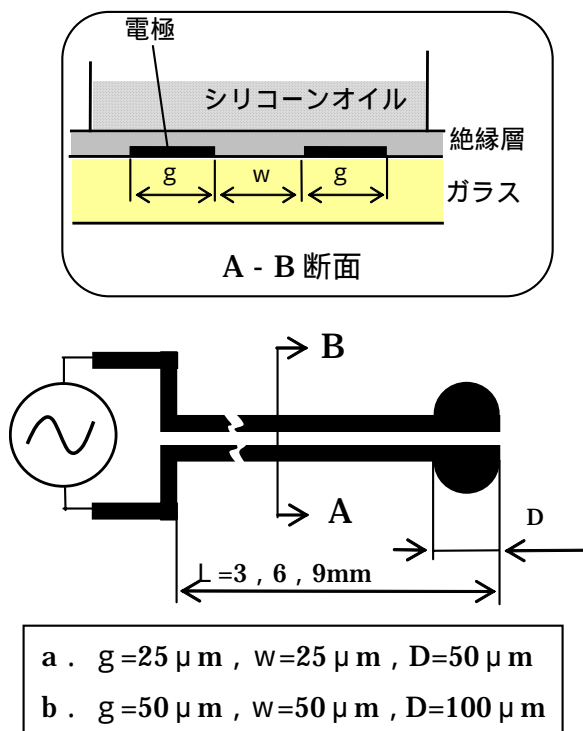


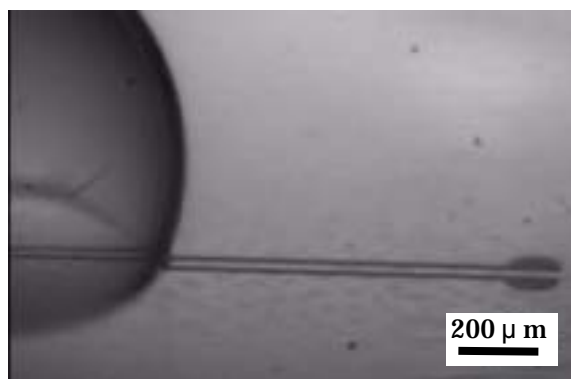
図2 基板に配置した平行平板電極の構造  
(a, bの2種類のサイズを製作)

と、誘電泳動力により電界の強い電極ギャップへと液体が引き込まれる結果、液体は、電極に沿って細長く変形させられ、電極に沿って電極他端まで移動していく。以後、このようにして形成された液柱をフィンガーと呼ぶことにする。その後、電界を取り去ると、キャピラリー不安定性により、液柱はいくつかに分裂し、電極上にnlオーダーの微小な液滴を形成する<sup>2)</sup>。

ところで、水を試料溶液として大気中でこの手法を行う際には、ジュール発熱によるフィンガーの沸騰や、生成した微小液滴が短時間で蒸発し消滅してしまうことなどが問題となっていた<sup>2)</sup>。これらの問題点を解決するために、系全体を絶縁性オイル中に浸漬する方法を考案し、誘電泳動が起こる条件等を実験的に検討し既に報告した<sup>3)</sup>。

このような系においては、液の移動速度は、周囲のオイルの粘性の影響を受けることになる。しかしながら、粘性媒質中での液体のDEPの定量的評価については、いまだ報告例がない。そこで、今回研究においては、粘性流体中での液体の誘電泳動、特にフィンガーの進展速度を、実験および解析的に検討した。

実験で試料溶液として使用した液は水で、数種類の粘性のシリコンオイル中におけるフィンガ



(a) 電圧印加前 (液滴  $10 \mu\text{l}$ )



(b) 電圧印加後 1.0s (電極上を液が移動)



(c) 電圧印加後 1.5s (液が右端に達する)



(d) 電圧除去後 0.03s (右端に微小液滴が形成)

図3 水の誘電泳動と微小水滴の形成  
媒質：シリコンオイル(粘度 1000cs)  
400kHz, 700V による駆動

ーの進展速度を計測した。また、周囲の粘性流体の作る流体抵抗を考慮した解析モデルを作り、それと実験結果との比較を行った。

## 2. オイル中での液体の誘電泳動と微小液滴の形成

### 2.1 実験方法

試料溶液としては蒸留水を用いた。実験で使用した電極の形状を図2に示す。ガラス基板上にアルミニウムの平行平板電極(厚さ約300nm)をパターンニングし,その上に絶縁層としてSiO<sub>2</sub>(厚さ約1~2 μm)をスパッタリングにより形成し,さらにその上からフォトレジスト(Siprey S-1813の20倍希釈液)をスピコートすることにより厚さ100nm以下の疎水膜を形成した<sup>3)</sup>。図に示すように,1)電極の間隔 $g=25\mu\text{m}$ ,幅 $w=25\mu\text{m}$ で先端の半円の直径 $D=50\mu\text{m}$ のもの,2) $g=50\mu\text{m}$ , $w=50\mu\text{m}$ , $D=100\mu\text{m}$ のものを,2種類を準備した。電極長さは3mm,6mmおよび9mmのものをそれぞれ製作した。

オイル中で実験を行うため,図2に示したように,絶縁層の上にオイルを約2mm程度溜めることができるチャンバーを設けた。オイルとしては,動粘性係数2~10000cs(cs=センチストークス $=10^{-6}\text{m}^2/\text{s}$ )のもの数種類のシリコンオイル(信越シリコン製KF96)を使用した。電極間には交流電圧が印加され,スイッチでon-offできるようにした。電源は最大電圧1kV,周波数 $f=700\text{kHz}$ の交流電源を使用した。

実験では光学顕微鏡に高速度カメラを取り付け,ミラーを使用して横方向から一連の現象を撮影(4500フレーム/秒)した。撮影した画像から,フィンガー先端の位置を時間の関数として測定した。

### 2.2 水の誘電泳動と微小液滴の形成

基板上的チャンバーをシリコンオイルで深さ約2mmに満たして実験を行った。図3にその結果の一例を示す。最初にピペットで水を電極の左端に置き(図3(a))電極間に電圧(700V,400kHz)を印加すると誘電泳動力により水は電極に沿って流れ(図3(b))右端に到達する(図3(c))。その直後電圧を除去すると電極を覆った液が切れ表面張力によって一部は最初の液滴に戻り,残った水が電極右端付近に集まり微小液滴が形成された(図4(d))。

(b),(c)を比べると,電圧印加直後の水の動きは比較的早く,電極の端に近づくにつれゆっくりとなることがわかる。また,シリコンオイルの粘

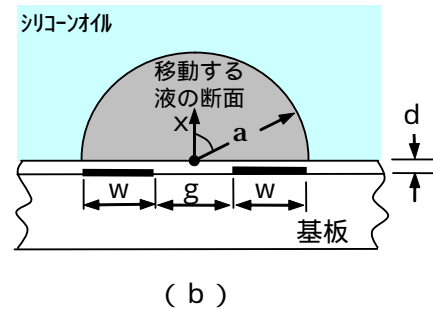
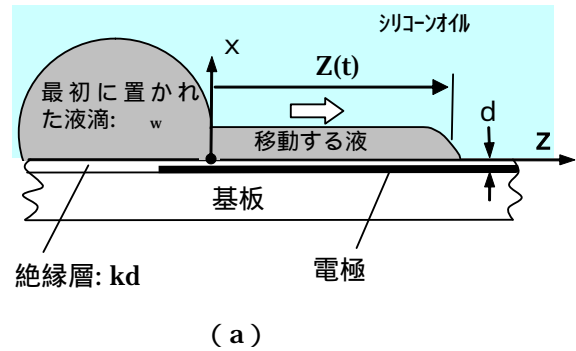


図4 粘性流体中におけるフィンガーの運動のモデル

性が大きくなるほど液の移動速度は遅くなる傾向が顕著に認められた。

## 3. 液体の誘電泳動の解析

### 3.1 液体の誘電泳動の運動方程式

以下では,粘性流体中でのフィンガーの進展速度の解析を行なう。

既に報告されている大気中でのフィンガーの進展速度の解析<sup>4)</sup>に基づき,図4に示すように,誘電泳動力によって電極上に半円柱状のフィンガーが形成され,これが電極に沿って進行する2次元モデルを考える。

フィンガーに加わる力は,誘電泳動力 $F_e$ ,液体の表面張力 $F_r$ ,基板表面および周囲の粘性流体から受ける粘性抵抗力 $F_\mu$ である。従って液体の運動方程式は,時刻 $t$ におけるフィンガー先端の位置を $z$ として,

$$\frac{\pi\rho a^2}{2} \cdot \frac{d}{dt} \left[ z \cdot \frac{dz}{dt} \right] = F_e + F_r + F_\mu \quad (1)$$

となる。ここで $\rho$ は液の密度, $a$ は電極上を移動するフィンガーの半径である。

誘電泳動力は、

$$F_e = \frac{V^2}{2} \cdot \frac{dC}{dz} = \frac{(\kappa_w - 1)C_d^2 C_{oil} V^2}{2(C_d + 2\kappa_w C_{oil})(C_d + 2C_{oil})} \quad (2)$$

で与えられる<sup>4)</sup>。ここで、 $\kappa_w$  は水の比誘電率で、

$$C_d \approx \kappa_d \varepsilon_0 w / d \quad (3)$$

$$C_{oil} \approx \varepsilon_0 K(1 - k^2) / 2K(k^2) \quad (4)$$

$\kappa_d$  は絶縁層の比誘電率、 $\varepsilon_0$  は真空の誘電率、 $K(k^2)$  は第一種完全楕円積分、 $w$  は電極幅、 $k^2 = (g/2a)^2$  である。以降では、図4のように電極の外側のエッジにまでフィンガーが存在する場合を考え、 $a = w + d/2$  と仮定する。

表面張力による力は、表面張力を  $\gamma$  [N/m] として、

$$F_\gamma = -\pi a \gamma \quad (5)$$

である。

境界面での粘性抗力は

$$F_\mu = -f_{shear} \cdot z \quad (6)$$

で与えられる。ここで、 $f_{shear}$  は単位長さ当りの粘性抗力で、液の速度  $dz/dt$  と粘性  $\mu$  に比例すると考えられるので、

$$f_{shear} = D \cdot \mu \cdot \frac{dz}{dt} \quad (7)$$

と置く。この時  $D$  はオイルの中で移動する液の形状や速度分布によって決定される無次元の粘性抗力係数である。

以上の  $F_e$ 、 $F_\gamma$ 、 $F_\mu$  を式(1)に代入して解けば、

$$Z(t) = \sqrt{\frac{2(F_e + F_\gamma)}{\mu D}} [t - T_\mu(1 - e^{-t/T_\mu})] \quad (8)$$

が得られる。ただし、 $T_\mu$  は時定数で、

$$T_\mu = \rho \pi R^2 / (2 \mu D) \quad (9)$$

で与えられる。たいていの実験条件では、 $T_\mu$  はミリ秒以下で、従って式(8)のこの中の第2項は無視でき、 $Z(t)$  は  $\sqrt{t}$  に比例することになる。

先に示したように、 $F_e$ 、 $F_\gamma$  の表式は既知であるから、あとは  $F_\mu$  を求めればよく、すなわち係数  $D$  を求めれば液の長さや時間の関係の表式を得ることが出来る。

### 3.2 粘性流体中を移動する液体が受ける抵抗

ここでは、係数  $D$  の表式を導く。

ここで扱うような低レイノルズ数流体の場合、長手方向の圧力勾配  $dP/dz$  (断面内一定と仮定) に対し、流体の運動方程式は、円柱座標系  $(r, \theta, z)$  を用いて

$$\nabla^2 v(r, \theta) = -\frac{1}{\mu} \frac{dP}{dz} \quad (= C \text{ と置く}) \quad (10)$$

で与えられる。ただし、 $v$  は流体の速度である。

試料液体中には誘電泳動力による圧力勾配が発生しており、周囲の粘性流体媒質には外力による圧力勾配はない。従って、フィンガーの半径の内 ( $r \leq a$ , 添え字 in) と外 ( $r > a$ , 添え字 out) で、それぞれ、

$$\nabla^2 v_{in}(r, \theta) = C \quad (r \leq a) \quad (11)$$

$$\nabla^2 v_{out}(r, \theta) = 0 \quad (r > a) \quad (12)$$

となる。これらを、界面での境界条件

$$\mu_{in} \frac{\partial v_{in}}{\partial r} \Big|_{r=a} = \mu_{out} \frac{\partial v_{out}}{\partial r} \Big|_{r=a} \quad (13)$$

$$v_{in} \Big|_{r=a} = v_{out} \Big|_{r=a} \quad (14)$$

および、基板表面での境界条件

$$v_{in} \Big|_{\theta=\pi/2} = v_{in} \Big|_{\theta=-\pi/2} = v_{out} \Big|_{\theta=\pi/2} = v_{out} \Big|_{\theta=-\pi/2} = 0 \quad (15)$$

の下で解けば、解が求まる。式(15)の境界条件を満たし、 $\pi/2 < \theta < -\pi/2$  で 1 となる関数  $u(\theta)$  のフーリエ展開が

$$u(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4 \cdot (-1)^{n-1}}{\pi(2n-1)} \quad (14)$$

であることを利用してこれを解けば、

$$v_{in}(r, \theta) = C \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4 \cdot (-1)^{n-1}}{\pi(2n+1)(2n-1)(2n-3)} \times \left[ -r^2 + \frac{\{(2n-1) \cdot \mu_r + 2\} \cdot r^{2n-1}}{(2n-1)(\mu_r + 1) \cdot a^{2n-3}} \right] \cdot \cos(2n-1)\theta \quad (15)$$

$$v_{out}(r, \theta) = -C \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4 \cdot (-1)^{n-1} a^{2n+1}}{\pi(2n-1)^2(2n+1)(1+\mu_r)r^{2n-1}} \times \cos(2n-1)\theta \quad (16)$$

が得られる。ただし、 $\mu_r = \mu_{out} / \mu_{in}$  である。

従って、移動する液の平均速度  $v_{avg}$  は、

$$\begin{aligned} \frac{dz}{dt} = v_{avg} &= \frac{1}{\pi a^2 / 2} \int_0^a \int_{-\pi/2}^{\pi/2} r v_{in} d\theta dr \\ &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{a^2 C}{\pi^2} \frac{4 \{(2n-1) \cdot \mu_r + 2n + 3\}}{(2n-1)^3(2n+1)^2(1+\mu_r)} \\ &= \frac{a^2 C}{4\pi^2} \frac{12 - 2\pi^2 + 14\zeta(3) + (\pi^2 - 8)\mu_r}{(1+\mu_r)} \end{aligned} \quad (17)$$

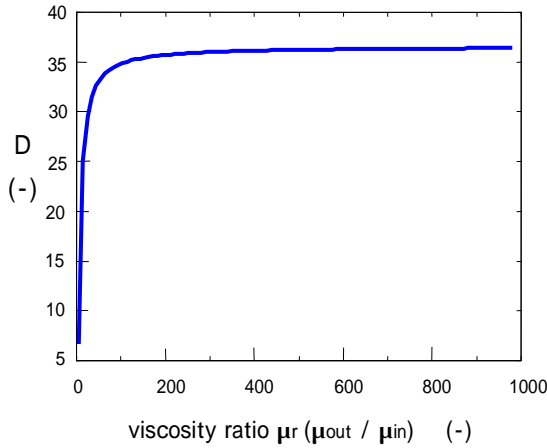


図5 粘性比  $\mu_r$  と抗力係数  $D$  の関係

となり，一方，

$$\begin{aligned}
 & f_{shear} / \mu_{in} \\
 &= 2 \int_0^a \left[ \frac{1}{r} \frac{\partial v_{in}}{\partial \theta} \right]_{\theta=\frac{\pi}{2}} dr + \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} \left[ \frac{\partial v_{in}}{\partial r} \right]_{r=a} a d\theta \\
 &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4a^2 C}{\pi} \frac{1}{(2n-1)^2} = \frac{\pi a^2 C}{2} \quad (18)
 \end{aligned}$$

であるので，

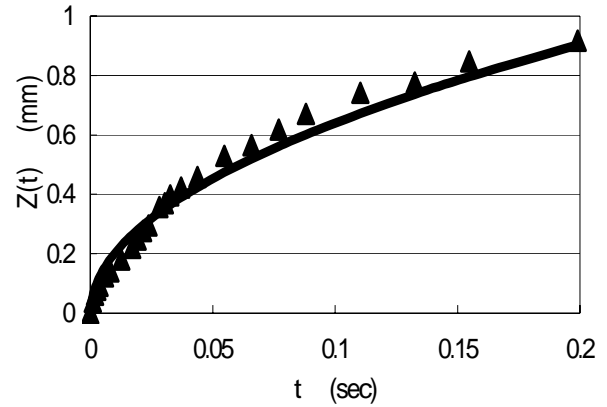
$$\begin{aligned}
 D &= f_{shear} / (\mu_{in} v_{avg}) \\
 &= \frac{2\pi^3 (1 + \mu_r)}{12 - 2\pi^2 + 14\zeta(3) + (\pi^2 - 8)\mu_r} \\
 &\approx \frac{62.0(1 + \mu_r)}{9.09 + 1.87\mu_r} \quad (19)
 \end{aligned}$$

と求まる。ただし，式(19)で， $\zeta(x)$ はリーマンのツェータ関数で， $\zeta(3)=1.20206\dots$ である。

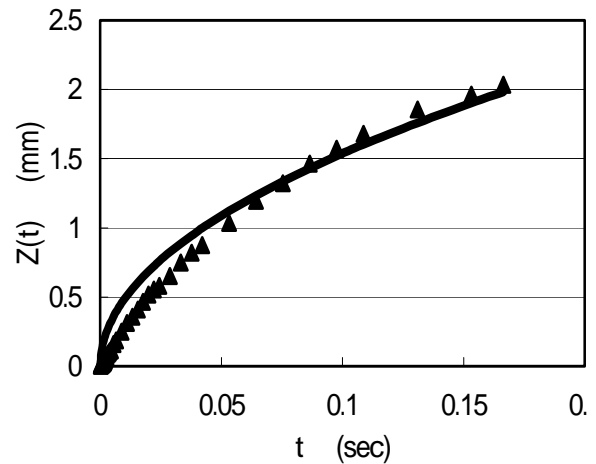
この  $D$  をプロットしたのが図5である。 $\mu_r = 0$  は空気中における抗力係数  $D$  で， $D = 6.82$  である。この図よりわかることは， $D$  の値は媒質の粘性すなわち  $\mu_r$  の増加とともに増加するが，あるところで飽和する。これは，媒質の粘性を増加させていくと， $r = a$  での境界条件が固体壁 ( $v=0$ ) に対するそれに近づき，これ以上粘性抗力が増えないためである。

### 3.3 実験結果と解析結果の比較

実験では動粘性係数  $\eta = 2, 50, 100, 1000$ ，および  $10000$  cs のシリコンオイルを準備し，各シリコンオイル中での水のフィンガーの進展を高速度カメラで撮影し，画像から  $z(t)$  を測定した。図6は，シリコンオイルの動粘性係数が  $100$  cs



(a) 動粘性係数  $100$  cs，印加電圧  $430V$



(b) 動粘性係数  $50$  cs，印加電圧  $410V$

図6 シリコンオイル中での誘電泳動によるフィンガー先端の進展

電極形状： $g = w = 25 \mu m$

印加周波数： $700 kHz$

理論値の計算に用いたパラメータ：

$\kappa_d = 4.6, \kappa_w = 80, \gamma = 0.073 N/m, \eta_{in} = 1$  cs

および  $50$  cs の場合の結果の例であり， $z(t)$  が実験値，実線は，それぞれの実験条件における理論計算値である。計算値と実測値は比較的良い一致を示した。

しかし，粘性が  $1000 \sim 10000$  cs のオイルを使用した場合，測定した水の移動速度は，オイルの粘性が大きくなるほど遅くなるのが観測された。一方，上記のモデルでは， $\mu_r$  が大きくなると  $D$  が一定になるので，この測定範囲では，移動速度は媒質の粘性にあまり依存しないはずである。

この不一致の理由は、上記の理論計算の2次元モデルにおいては、フィンガー先端の受ける流体抵抗を考慮に入れていないことにあると考えられる。

すなわち、モデルにおいては、フィンガー側面の受ける粘性抗力しか計算に入れていないため、媒質（オイル）の粘性を無限に大きくしても粘性抗力係数  $D$  は無限に大きくはならず、固体壁に対する値に飽和する。一方、フィンガー先端の受ける流体抵抗は、この部分の面積が小さいため、媒質の粘性が小さい場合には問題にならないが、媒質の粘性を増加させるとそれに比例していくからでも大きくなるので、媒質の粘性が大きい場合には、フィンガー側面の抵抗よりも大きくなると考えられる。

従って、粘性の大きい媒質中での運動を記述するためには、フィンガー先端の受ける粘性抗力を考慮に入れる必要がある。現在、このようなモデルの開発を行っている。

#### 4. まとめ

粘性流体媒質中での誘電泳動による液体の移動速度について、実験・理論の両面から検討を加えた。その結果、以下の結論を得た。

- (1) シリコンオイル中に置かれた平行ストリップ電極を用いて、水を誘電泳動により電極に沿って移動させること（フィンガーの形成）、およびその後に電界を取り去ることにより、電極上に液滴を形成できることを、実験的に確認した。
- (2) さまざまな粘性係数を持つシリコンオイルを用い、粘性媒質中でのフィンガーの進展速度を計測した。進展速度は、周囲のシリコンオイルの粘性が大きくなるにしたがって遅くなった。
- (3) 粘性媒質中でのフィンガーの進展につき、媒質の粘性がフィンガー側面に及ぼす流体抗力を考慮に入れた2次元モデルを構築し、フィンガー先端位置を時間の関数として表した。
- (4) 上記のモデルによる計算結果と実測値の比較を行い、媒質の粘性係数の小さいところでは両者が比較的よく一致することを見いだした。
- (5) しかしながら、動粘性係数が  $100\text{cs}$  を超えるところでは、計算結果からの乖離が見られた。これは、今回の2次元モデルにおいてはフィンガー先端の受ける粘性抗力が考慮に入っていないためと思われる。

今後、フィンガー先端の受ける粘性抗力を考慮に入れたモデルを開発し、粘性流体中での誘電泳動現象の正確な記述法を確立していく予定である。

#### 謝辞

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金(課題番号 16-61612)及び、文部科学省科学研究費補助金(基盤研究 A14205037)の助成を受け行われ、電極パターンニングのためのマスクは東京大学大規模集積システム設計教育研究センター(VDEC)のEB描画装置を用いて製作されました。

また、本研究は著者の伊藤が平成13年度文部科学省在外研究員として、軍司が米国情報局(USIA)主催交流訪問プログラムの短期奨学生として米国ロチェスター大学に滞在した際に開始されました。関係各署に対し深甚なる謝意を表します。

#### 【参考文献】

- 1) T. B. Jones, J. Electrostat. 51-52, p. 290-299 (2001)
- 2) T. B. Jones, M. Gunji, M. Washizu, M.J. Feldman, J. Appl. Phys. 89, p.1441-1448 (2001)
- 3) 伊藤友仁, T.B.ジョーンズ, 静電気学会講演論文集'02, p.147-150 (2002)
- 4) T. B. Jones, Proc. 4<sup>th</sup> Int'l Conf. on Applied Electrostatics, p.1-8 (2001).