

# 博士論文

ペルチェ加熱冷却によるサブミリチャンネル内旋回流の研究

石井 慶子

# 目次

1. 背景.....	4
1.1. マイクロ流体技術の必要性.....	4
1.2. マイクروسケールにおける流れの特性.....	6
1.3. 先行研究におけるマイクロミキサー .....	10
1.3.1. 初期のアクティブマイクロミキサー .....	11
1.3.2. 電気流体力学現象を利用したアクティブマイクロミキサー .....	12
1.3.3. 磁気流体力学現象を利用したアクティブマイクロミキサー .....	14
1.3.4. 超音波を利用したアクティブマイクロミキサー .....	14
1.3.5. 液体金属を駆動部とするアクティブマイクロミキサー .....	15
1.3.6. 熱を利用したアクティブマイクロミキサー.....	16
1.3.7. 流路構造を利用したパッシブ制御型マイクロミキサー .....	17
1.3.8. 表面張力を利用したパッシブ制御型マイクロミキサー .....	21
1.4. マイクロソーティング技術.....	21
1.4.1. 精密なマイクロソーティング技術.....	23
1.4.2. 大量処理型のマイクロソーティング技術 .....	25
1.5. 粘性によるマイクロ流体制御技術 .....	26
1.6. 本研究の目的と位置づけ .....	27
2. 実験方法.....	31
3. ペルチェ素子駆動時に発生する定常的な成層.....	59
3.1. PIV で得られた速度マップ .....	59
3.2. PIV より得られた時系列速度変動データ .....	61
3.3. 下流部で発生する流れ場 .....	63
3.4. 本研究の構成.....	65

3.5.	鉛直軸における速度分布 .....	66
3.6.	入力電力と成層強度の関係.....	67
3.7.	流路形状と $v_D$ の関係 .....	69
3.8.	電圧上昇速度と $v_D$ の関係 .....	71
3.9.	ペルチェ素子による成層の実験結果のまとめ .....	73
4.	計算による旋回の特徴評価.....	74
4.1.	計算方法 .....	74
4.2.	成層のメカニズム.....	78
4.3.	旋回の評価 .....	80
4.4.	$I_s$ の温度依存性.....	82
4.5.	$I_s$ の粘度依存性.....	83
4.6.	$I_s$ の流入流速依存性 .....	84
4.7.	$I_s$ のスケール依存性 .....	85
4.8.	$I_s$ の断面形状依存性 .....	85
4.9.	$I_s$ と Ra 数の関係.....	86
4.10.	$I_s$ の設置姿勢依存性.....	87
4.11.	$I_s$ の不安定性.....	89
4.12.	内部液の温度分布 .....	90
4.13.	混合効率.....	94
4.14.	本現象のマイクロミキサーとしての有効性 .....	99
4.15.	旋回流のまとめ .....	102
5.	ペルチェ素子を駆動する際の急速な速度変動 .....	104
5.1.	電圧・流量による $I_{max}$ , $I_{min}$ の値の変化 .....	105
5.2.	ペルチェ素子の入力と遮断の瞬間における流動と温度変化 .....	110

5.3.	電圧上昇速度による $I_{min}$ の特性 .....	113
5.4.	流路形状による $I_{max}, I_{min}$ の特性評価 .....	116
5.5.	電気浸透現象の検証 .....	120
5.6.	電磁場解析ソフトによる電場の計算 .....	124
5.7.	圧力と変位の調査 .....	127
5.8.	構造物変位による流動場の数値計算 .....	132
5.9.	本現象を用いたマイクロ流体制御技術の提案 .....	134
5.10.	本章のまとめ .....	135
6.	結論 .....	136
	参考文献 .....	138
	図表目次 .....	142
	謝辞 .....	146

# 1. 背景

## 1.1. マイクロ流体技術の必要性

微細管流れを持つ機器が近年急速に発展しており、新しい学問・産業として注目されている。マイクロチャンネルでは温度や流れの安定性が担保される。同時に、マイクロ化した流路では比表面積が非常に大きくなることから、単位体積あたりの熱伝達や、分子拡散による混合が促進される[1]。分析用途では、サンプルの量を劇的に減らすことが可能である。これらの利点より、流路内にミキサーやバルブ、ポンプ等を組み込み、一枚のチップ上で総合的な分析や化学合成を可能にする機器等の実現が期待されている。

マイクロチャンネルを持つ機器は、micro-Total Analyse System ( $\mu$ -TAS) [2]、CPUなどの各種電子機器の冷却[3]、マイクロヒートパイプ、吸収式冷凍機、クロマトグラフィー[4]など多く存在し、高性能化に向けて多くの研究が行われている。米では1990年代より、化学兵器や生物兵器への対応策として、自由液面を持つマイクロfluidicセンサーの開発も行われている[4] [5]。また、ソフトロボットという技術では、シリコン等で形成された柔らかい躯体内部にマイクロチャンネルを有しており、内部の液体を制御することで駆動する[6]。以上のように微小流路を用いた技術は、非常に幅広い応用がなされており、微小スケールの流体制御技術の理解や多様性が重要な意味を持つといえる。

$\mu$ -TASとは、マイクロ流路を有したチップであり、この中で統合的な分析システムを可能にするものとして期待される。 $\mu$ -TASのチップはガラスや樹脂の数センチ四方の基盤の上に用途に応じたマイクロもしくはサブミリ程度の流路を成型し、さらにポンプ、バルブ、センサーなどを同時に集積している。一枚のチップに微量の血液を流すことで血液検査が可能になるほか、DNA解析、環境モニタリング、細胞分離や検出、総合的な化学分析の実現が可能であり、産業・学術分野において広く期待されている。Fig. 1に $\mu$ -TASによるDNA解析のイメージを示す。これらのデバイスは小さいことだけでなく、マクロな分析装置を用いた場合に比べて、必要な試料、試薬の量が少なく済むメリットがある。マイクロスケールではサンプルそのものを小さなチップ上で処理し、かつ体積当たりの表面積が大きいため温度の精密制御が容易となる。これは温度制御が重要なPolymerase Chain Reaction(PCR)や酵素反応を扱う生化学用途において大きな利点である。急激な発熱反応への対応、熱サイクルへの応答を調査することも容易になる。マクロスケールでの化学合成では、副生成物による還元や、熱分解などにより生成物の収率低下などの問題があるが、微小流路場内での反応においては、コンタミネーションの問題を回避できることに加え、化学反応の安定性が増す。このため、効率よく物質生成ができるとされている。

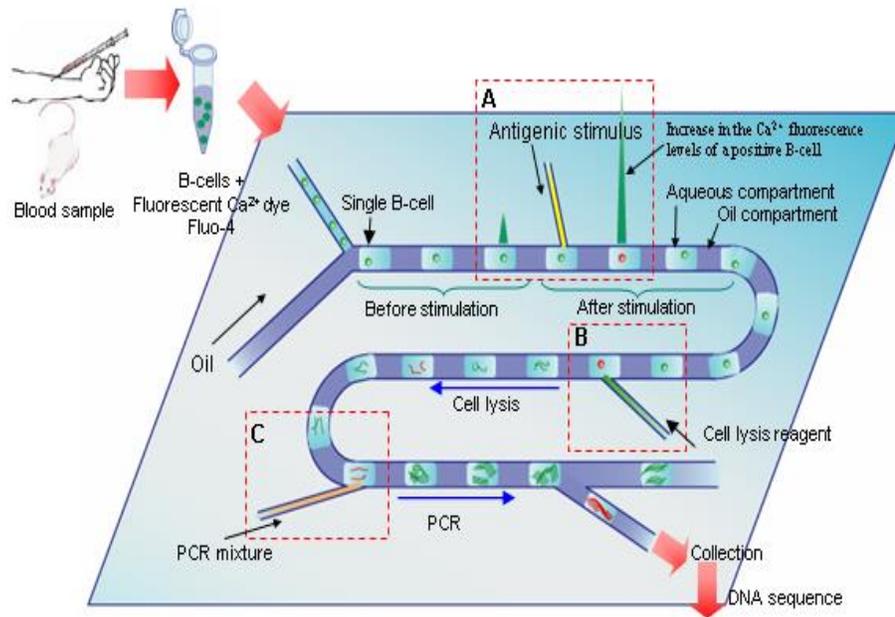


Fig. 1  $\mu$ -TAS による DNA 分析のイメージ[7]

$\mu$ -TASの要請に伴い、マイクロフルイディクスと呼ばれる、微小流体を取り扱う技術が注目を集めている。 $\mu$ -TASでは様々な機能を集積することから、単純な圧力駆動による攪拌や滞留等の操作が難しい。このため、液体の制御手法の開発が盛んに行われている。マイクロ流体の制御技術には、混合、ソーティング、輸送、内部生成物や計測対象のマニピュレーションがある。

そのなかでも重要な制御技術であるのがマイクロ混合である。上述した $\mu$ -TASに加えて、生化学的な分析、ドラッグデリバリー、酵素反応やタンパク質合成などでは、バッファーや試薬等との混合が必要不可欠である。しかし、微小スケールでは容易に流れが混合せず、直接かき混ぜることが困難である。このため、現在までに様々なマイクロミキサーが開発されている。ソーティングやマニピュレーションについても重要である。しかし、アクチュエーターなどを用いる場合、マイクロ流動では微細な装置を組みこむこととなり、システムコストが高いばかりでなく、動力や耐久性にも問題がある。マイクロポンプについては、シリンジポンプによる体積駆動や、電気浸透ポンプが一般的に用いられている。特に電気浸透流はマイクロ流体駆動に適合性が高い。

マイクロリアクターにマイクロ流路を使用する場合、1台当たりの生成量が少ない。このため、多くのミキサーやマニピュレーターを積層する必要がある。このとき、流路が微

小であることから、圧力損失の上昇がマクロスケールの流動に比べて大幅におおきくなる。結果として、ミキサー内部の故障が起きやすくなり、その際はメンテナンスも難しい。圧力損失への対策として、動力に用いる装置のシステムコストが高くなる問題がある。また、マイクロチャネルでは、加工における形状の微細な変化によって分圧が等しくならず、流速分布が全体的に変化するという報告がある。このため、微小流路を積層した際、均質な流れ場を形成することが困難である可能性がある[8]。μ-TASなどの分析チップを用いる場合にも、それぞれのチップは使い捨てることが想定され、チップあたりのシステムコストを抑えることが重要である。

以上より、マイクロフルイディクス技術の発達が望まれているが、圧力損失が小さく、故障が起きにくく、シンプルなシステムを搭載することが望ましい。

## 1.2. マイクロスケールにおける流れの特性

マイクロチャネルは一般的に幅  $1\ \mu\text{m}$  以上、 $1\text{mm}$  以下の流路と定義される[9]。慣性と粘性の比を示した無次元数であるレイノルズ数 (Re 数) を式(1.1)に示す。Re 数は代表長さ、もしくは代表速度が小さくなるほど小さくなり、粘性効果が強くなる。流量も数百  $\mu\text{l}/\text{min}$  以下程度であることから、Re 数は非常に小さくなり、マイクロスケールの流れ場は層流となる。このスケール効果について、Table 1 にまとめる。ゆえに低 Re 数の流れでは、分子拡散によってのみ混合が進み、流路が長くなっても容易に混合が促進しない。一方で、μ-TAS 等において、前述のように試料に試薬を加えたり、化学反応による物質生成のために混合は非常に重要である。

分子拡散は、理想的には式 (1.2) の拡散方程式に従う。

$$\text{Re} = \frac{Ud}{\nu} \quad (1.1)$$

$U$ :平均流速,  $d$ :代表長さ,  $\nu$ :動粘度

$$\frac{\partial q}{\partial t} = D\left(\frac{\partial^2 q}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 q}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 q}{\partial z^2}\right) \quad (1.2)$$

$q$  は物質濃度,  $D$  は拡散係数を示す. 時間とともに物質が空間的にどう広がっていくかを示す式である. 式 (1.2) を座標変換し, 無限遠で濃度 0 という条件を与えた時の解は式 (1.3) のようになる.

$$q(r, t) = \frac{M}{8\rho(\pi Dt)^{\frac{3}{2}}} \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right) \quad (1.3)$$

ここで,  $M$  は物質の全質量,  $\rho$  は密度である. つまり, 拡散時間  $t$  は拡散距離  $r$  の 2 乗に比例することを示している(Fick の法則). たとえば, 10mm の流路で拡散に 1 分かかる物質は, 1mm の流路では 0.6 秒で拡散が完了する. 拡散による混合のみを考える場合は, マクロスケールに比べてマイクロスケールのほうが非常に短い時間で混合すると言える. このため, ある種のマイクロミキサーでは流路幅の一部を狭くすることで混合を促進させる. しかし, タンパク質の一種であるミオシンの分子拡散係数は  $10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$  であり, これは  $100\mu\text{m}$  の分子拡散に 103 秒を要する. 作動物質を問わず, より早く混合をすすめるためにはより混合界面積を増大させる必要があるといえる[9].

マイクロ・ナノスケールの流れは多くの場合非圧縮性ナビエ・ストークス方程式で表すことができる. 式 (1.4) に非圧縮ナビエ・ストークス方程式を示す.

$$\frac{\partial u_i^*}{\partial t^*} + u_j^* \frac{\partial u_i^*}{\partial x_j^*} = -\frac{\partial p^*}{\partial x_i^*} + \frac{\mu}{\rho LU} \frac{\partial}{\partial x_j^*} \left( \frac{\partial u_i^*}{\partial x_i^*} + \frac{\partial u_j^*}{\partial x_j^*} \right) + \frac{\mu}{\rho U^2} F_{v,i} \quad (1.4)$$

右辺第二項は粘性項であり, 係数は  $1/\text{Re}$  と表される.  $\text{Re} \ll 1$  のとき, 非線形項である慣性項は無視できるほど小さくなり, NS 方程式を線形化することができる. これを Stokes 近似と呼ぶ. 右辺第三項は体積力を表す. この項は液体中に密度差が生じる場合, 電磁気力が働く場合, 気泡や粒子を含む流れの場合考慮する必要がある. 容器壁面の温度変化や, 物質の溶解によって体積力が作用し, 自然対流が発生する. 自然対流の影響の大きさを表す無次元数はグラスホフ数 (Gr 数) と呼ばれる. Gr 数を式 (1.5) に示す.

$$\text{Gr} = \frac{gL^3}{U^2} \quad (1.5.)$$

なお、第三項は以下のように書き換えることができる。

$$\frac{\mu}{\rho U^2} F_{v,i} \propto \frac{\text{Gr}}{\text{Re}^2} \quad (1.6.)$$

Gr数は代表長さの3乗に比例する。ゆえにスケールが小さくなるにしたがって自然対流の影響は非常に小さくなるため、一般的にマイクロ・ナノ流体デバイスでは自然対流の影響は無視される。このため浮力対流等は生じないものとして扱われてきた。流体混合のために3次元的な流れ場を生む試みが数々なされているが、流れ場の安定性が高いことから、すぐに層流に戻る特徴があり、継続的に流れ場を乱すことが難しい。

微小流路を用いたデバイスでは、マイクロオーダーの流路内で様々な反応を起こさせるため、微小空間において速度、温度、濃度等の勾配が非常に大きくなる。マイクロ・サブミリ領域では、代表長さが減少することによって界面積が増大する。このため体積力に対して、表面力の影響が増大し、マクロスケールと比較して粘性や熱、物質の拡散の影響が強い系となる。様々な現象が複雑に影響しあう場を形成することが多いため、連続体近似が成立する場合であっても、流れ場の総合的な理解が十分得られていない。このため、これまで観測されなかった流れ場が発見される可能性が高い。

上述のように、マイクロスケールの流れではナビエ・ストークス方程式において慣性項を無視して取り扱うことが多い。マイクロスケールの定常・非圧縮の流れ場において、流速は下式のように圧力勾配と粘性で流速を決定することができる[10]。

$$U \propto \frac{1}{\mu} \nabla p \quad (1.7.)$$

式(1.7)より、作動流体の粘性が一定に変化することによって、流速分布が反比例することを示している。ここで、温度等による粘性が局所的に変化すると流動も局所的な変化

を示すと考えられる。一方でマイクロスケールは温度一様性がメリットであることから、流体の温度場による流動について検査した例は多くない。

本研究では、微小流れ場と温度の影響が十分調査されていないため、これがマイクロフレイディクス技術に応用できるのではないかという点に着目した。温度による流体制御が可能であれば、チップの外から熱を加えるだけでよく、内部に複雑な装置を組み込む必要がなくなる。

**Table 1 スケール効果**

Area	$l^2$	Time	$l^0$
Volume	$l^3$	Velocity	$l$
Re. fluctuations	$l^{-1/2}$	Hydrostatic pressure	$l$
Re number	$l^2$	Hydraulic resistance	$l^{-4}$
Pe number	$l^2$	Stokes drag	$l$
Diffusion time	$l^2$	Particle diffusion const.	$l^{-1}$
Fluid acceleration time	$l^2$	Taylor dispersion time	$l^{-2}$
Young-Laplace pressure	$l^{-1}$	Contact angle	$l^0$
Bond number	$l^2$	Capillary rise height	$l^{-1}$
Marangoni force	$l^{-1}$	Capillary speed	$l$
Electric field	$l^{-1}$	EO velocity	$l^{-1}$
Ionic mobility	$l^{-1}$	EO mobility	$l^0$
Debye length	$l^0$	EO flow rate	$l$
Debye frequency	$l^{-1}$	EO pressure	$l^{-2}$
DEP force, particle	$l^3$	MAP force, particle	$l^3$
DEP force, system	$l$	MAP force, system	$l$
Thermal diffusion time	$l^2$	Acoustic impedance	$l^0$
Thermal resistance	$l^{-1}$	Acoustic radiation force	$l^3$
Thermal capacitance	$l^3$	Optical absorbance	$l$
Thermal RC-time	$l^2$	Optical damping coeff.	$l^0$

### 1.3. 先行研究におけるマイクロミキサー

従来のマイクロミキサーの混合方式は、アクティブ制御とパッシブ制御の二つに分類することができる。Fig. 2にマイクロミキサーの分類を示す[11].

パッシブマイクロミキサーは、外的な力を必要とせず、流路内部の特殊な構造によって混合をすすめるものをいう。アクティブマイクロミキサーは流路外の装置を用いて、流路内部の流れを混合させる。ここでいう外力には、圧力、温度、電気流体力学現象、超音波など多岐に渡る。パッシブマイクロミキサーは動力が必要ないため、コストを抑えた生産が可能である。一方で微細加工を必要とし、複雑な形状では圧力損失も増大する傾向がある。アクティブマイクロミキサーは動力を必要とすることからシステムコストが高くなりやすい。一方、微細加工や、流路を複雑形状にする必要が少ないケースが多い。このため、圧力損失を増大させにくいメリットがあるといえる。本章では先行研究で開発されたマイクロミキサーについてレビューを行う。

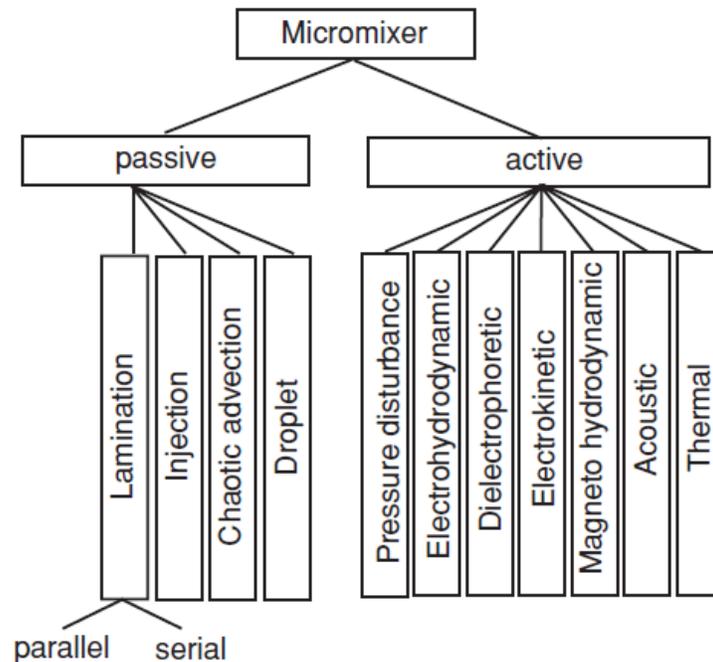


Fig. 2 マイクロミキサーの分類[11]

### 1.3.1. 初期のアクティブマイクロミキサー

アクティブ制御には、回転翼を挿入したり、振動を与える機器を挿入することで外力を加えるものが挙げられる。最も初期に開発されたアクティブ型マイクロミキサーは圧力を利用した物である。Bottausciらは、Fig. 3に示すような、T字チャネルによる2液の混合の合流部に垂直な流路を3ライン設け、この3ラインにマイクロシリンジを用いて周期的な圧力を加える事で流体の混合を行った[12]。同時に混合における周波数の最適化を行っている。流れによる流体の境界の状態の考慮が難しいが、MVC (mixing variance coefficient)という指標を用いる事でPIVとCFD結果から最適化を行っている。Liuらは作動流体の流入流路入口自体にパルス的な圧力変動を与えて流体混合を行った[13]。これによってカオス的な流れが誘起されている。

Luらは、流路中に磁気によって回転するPDMS製のマイクロステーターを設置することで、内部への配線等を必要とせずに流体混合を促進する手法を開発している[14]。Fig. 4にマイクロステーターの画像を示す。2.5mm750 $\mu$ mの流路に対して400 $\mu$ mであり、回転数は100~600rpmである。回転数が高いほど混合が促進しやすいと結論している。2つの流入口の片方から水を、もう片方から色素を流し、液体の色素濃度から混合を評価している。このときの混合の指標、Mixing indexを式(1.8)で示す。

$$\text{Mixing index} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum \left( \frac{c_k - \bar{c}}{\bar{c}} \right)^2} \quad (1.8)$$

ここで、 $N$ はサンプリングエリアのピクセル数、 $c_k$ は注目している画素の色素濃度、 $\bar{c}$ はサンプリングエリアの濃度平均である。この値が0.2以下になる地点を混合が完了したとみなしている。なお、近年では一般的に混合達成指標として0.1が設定されることが多い。Luらはこのマイクロステーターを2.5mm幅のチャンネル内部に、9個配置した混合用チャンバを設け、最大回転数の600rpm運転させた場合、55秒で混合が完了したと報告している。流量は0.17 $\mu$ l/min、流速は140 $\mu$ m/sが基本条件である。この結果からもマイクロ流路の混合は、複雑な加工を施し、外力を加えても容易に混合が進行しないことがわかる。

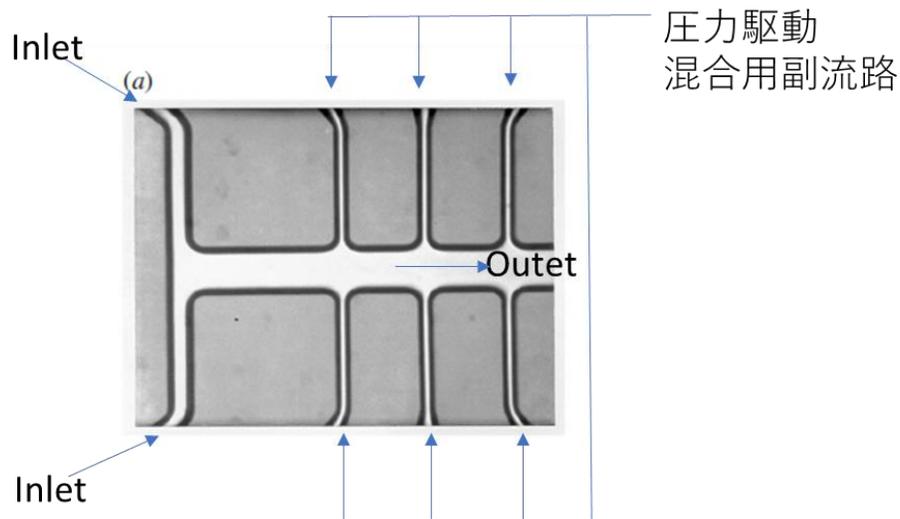


Fig. 3 Bottausci らによるアクティブ制御マイクロミキサーの流路[12]

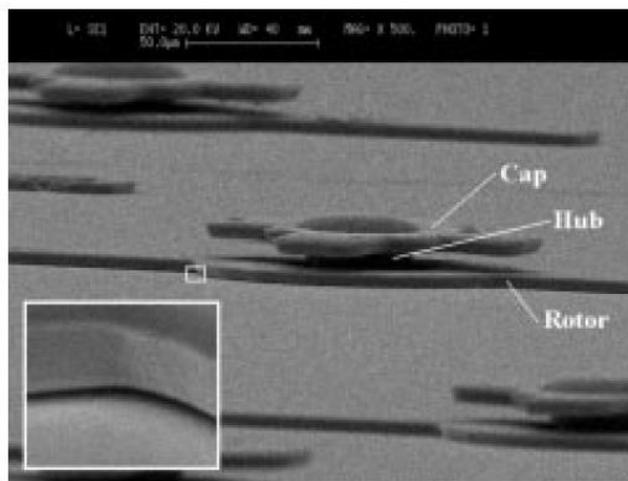


Fig. 4 Lu らによるマイクロスティラー[14]

### 1.3.2. 電気流体力学現象を利用したアクティブマイクロミキサー

Electro Hydro Dynamics 現象 (EHD) の利用は新しい物質の混合や反応に期待されている。EHD とはイオン化した流体中の粒子や分子が電場や周辺流体と相互作用する事によって起きる動きのことを言う。この概念は電気泳動 (electrophoresis) , 電気浸透 (electro-osmosis) , 電気回転 (electrorotation) 等の現象を内包している。電気泳動と電気浸透は原理的には同じ現象であるが、電気泳動は液中の物体が移動する現象を示し、電気浸透は

液体そのものが動く現象をいう。Tsouris, MoctorらはEHDを利用したマイクロミキサーを開発している[15][16]。これはLiuらによるパルスのな圧力変動による流体混合制御と類似した流路構造を持つ。メイン流路に対して垂直な通電用の流路を作成し、副流路に配置した電極に400~900Vの電圧を周波数的に加えることで混合を促進させる。Re数0.02のとき、混合距離150 $\mu\text{m}$ で混合を達成している。流路に電圧を加えることは、混合だけでなく流体温度にも影響を与える。Rossらは200Vから2400Vの高電圧を流体にかけることで、流体温度を制御し、この温度場を実際に計測した[17]。液体温度は数秒で80 $^{\circ}\text{C}$ 程度にまで上昇する。化学反応や生体反応での用途では、高電圧が対象に与える影響を加味する必要があると言える。Ebrahimiらは電気浸透流とともに流路にリブを設置したT字チャネルで流体の混合を試みるとともに、熱流束の評価を行っている。すなわちパッシブとアクティブの両方の性質を併せ持つ流路を設計している。不均一な電位によって合流部の流れは波打つように変動する。リブによるパッシブ制御によってこの波を増大できることを示している。また電位が温度拡散に影響をあたえることを示している[18]。EHDを利用した流体制御は比較的高電圧を利用するため、長時間の利用では熱設計を加味する必要がある。

電気浸透流はポンプなど、一般的な流体駆動法としても用いられる。マイクロ流路への液体注入にはシリンジポンプが最も用いられるが、これはステッピングモーターを使用することから、回転による振動の影響を完全に除することは難しい。現在では $\mu\text{-TAS}$ などに用いる電気浸透ポンプも市販されている。液体が導電性を保つ場合、外部から電場や磁場などを作用させると、流体に体積力が働く。この力は、電場、磁場の強さに比例する。伝導性流体は電気的中性を保とうとすることから、壁近傍や界面近傍以外では、電場の効果を無視することができる。このため、壁や界面近傍以外では、電気的な体積力を考慮する必要がない。多くの固体壁面は電解液と接する際に表面電荷をもつ。これは、電解液中のイオンが壁面に吸着する際や、壁面の分子がイオン化することによって液中に溶け出すことで起こる。表面からプロトンが離脱し、表面が負イオン化する場合が最も多い。シリカ、ガラス、アクリルなどがこのグループに属する。表面電荷密度は電解液のpHに大きく左右され、例えばシラノール基の脱プロトン反応は



と表すことができる。表面が負に帯電するため、表面近傍には正のイオンが集積し、負イオンは近傍から除去される。結果として電氣的に中性とまらない層ができあがり、この層を電気二重層と呼ぶ。電気二重層に電場を付与すると、電気浸透流が発生する。電気二重層の厚さは一般に薄く、おおよそ数 nm 程度であり、壁から離れた流体に対しては電氣的な作用を及ぼすことはない。燃料電池などにも利用される。電気浸透流をマイクロミキサーに応用する試みもある。電気二重層のすべり面と、界面から離れたところの電位差を $\zeta$ 電位と呼ぶ。 $\zeta$ 電位は、コロイド粒子の安定性などにも関係するパラメータである。これが均一だとプラグ流れとなり、普通の押し出し流れとなって、流体は混合しない。そこで、 $\zeta$ 電位を不均一にすることで混合を試みる研究が行われている。シミュレーションでは、 $\zeta$ 電位の制御によって三次元的な流れが発生する事が示唆されている。Ichiyanagiらは、PIVとLIFを用いて、 $\zeta$ 電位が不均一な場における電気浸透流の流動と混合特性を調査しており、実際に3次元的な流れが起きることを示している[19].

#### 1.3.3. 磁気流体力学現象を利用したアクティブマイクロミキサー

磁気流体力学現象 (magneto-hydro-dynamics : MHD) とは常磁性の流体を扱うように拡張された流体力学である。Bauらは磁気を利用したマイクロミキサーを開発している[20]。一般的に、流体に働く磁力は流体の体積に比例するため、流れを乱すのに十分な力が発生しないと予想される。しかし、磁力をマイクロデバイスに利用することは利点がある。磁界が存在する系で電流を発生させると、それぞれに垂直な方向にローレンツ力が生まれる。このため、磁界中の流路に電解液を流し、ミキシング部に複数の電極を配置し、そこに電流を流すことで3次元的な流れを発生させることができる。

#### 1.3.4. 超音波を利用したアクティブマイクロミキサー

超音波を利用して液体を攪拌する方法はMoroneyらにより提案されている。シリコンを用いたflexible-plate-wave (FPW)を流路中に置くことで超音波による力を液体に加える。FPWとは圧電素子を用いた流体駆動法であり、正弦波の電圧を適用することで、混合が促進できる。周波数と電圧を変化させることで混合を制御することができる[21].

一方、超音波の使用では、流体の温度上昇が懸念される。Yasudaは酸化亜鉛を用いた圧電フィルムを流路中に配置することで流体中の物体操作を試みている[22]。素子は周波数を流路の厚みモードと一致させた正弦波で駆動している (240 MHz, 480 MHz)。そこ

で、有意な温度上昇が見られないことから、超音波を用いた混合法の有効性を示している。

Bezaguらは超音波と perfluorocarbon (PFC) を組み合わせた混合法を開発している。Perfluorocarbon とは炭化水素の水素部分を全てフッ素に置換したものであり、安定性の高く不活性の物体であることからエアコンの冷媒などに用いられる。混合したい2液の間に沸点の低いPFC層を形成させ、ある点で超音波を適用するとPFCが気化し、2液を混合することができる。PFCは安定性が高く、流路下流で再び液化し、容易に取り出すことができる[23]。混合のイメージを Fig. 5 に示す。

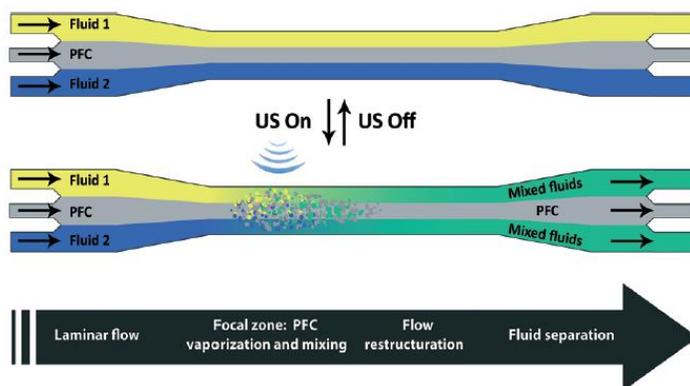


Fig. 5 PFCの蒸発を用いたマイクロミキサー[23]

### 1.3.5. 液体金属を駆動部とするアクティブマイクロミキサー

Tangらは Galinstan (ガリンスタン) という液体金属を用いたマイクロミキサーを開発している。これはガリウム、インジウム、スズの共晶合金であり、常温で液体の金属である。他の常温で液体である金属に比べて毒性が低いことから温度計において使われる水銀等の代用や冷却材として期待されている。Tangらはこのガリンスタンの液滴を流路混合部に配置し、高周波のサイン波の磁界を加える事で振動させ、カオス的の混合を誘起させている。実際に振動している際の様子を Fig. 6 に示す。製造が容易であり、低コスト、低消費電力で操作性が高いなどのメリットがある[24]。

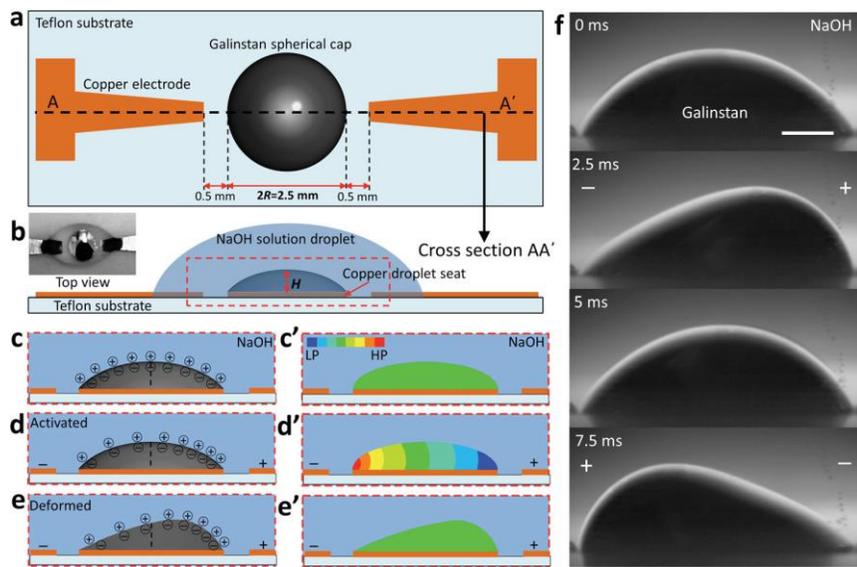


Fig. 6 ガリンスタンを利用したマイクロミキサーの駆動部[24]

### 1.3.6. 熱を利用したアクティブマイクロミキサー

XuらはT字チャネルの合流部中央に銅の円柱を配置し、これを通電加熱することで液体の混合を試みている[25]。Fig. 7に撮影された銅円柱周りの混合の映像を示す。加熱電圧が大きいほど混合が進むことがわかる。熱拡散係数は物質拡散係数にくらべて約100倍程度数値が大きいことに注目し、Xuらは、熱拡散がマイクロ流路の混合に及ぼす影響を調査している。銅円柱を加熱するために加える電圧が大きいほど流体混合が促進されることを示している。また、流量が少ないほど混合効率が良いことを示している。一方で、熱による混合促進には限界があると述べている。

熱を利用したマイクロミキサーはあまり先行研究が存在しない。また、実用可能な混合法として示した例は現状存在しないと考えられる。

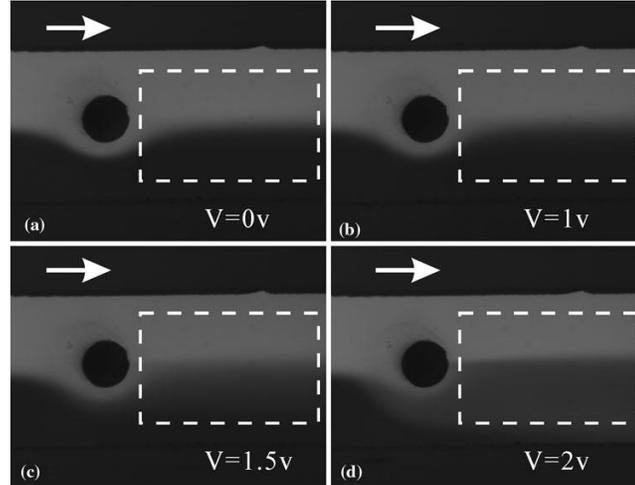


Fig. 7 加熱銅円柱による混合[25]

### 1.3.7. 流路構造を利用したパッシブ制御型マイクロミキサー

パッシブ制御は主に、(1) 特殊な流路形状を利用し、分子拡散とカオス位相によって混合を促進するもの、(2) 混合したい2液の層流の流路幅を狭くすることで、分子拡散に必要な距離を減少させるもの、(3) 流路を複数に分岐させ、界面積を増やすことによって拡散距離を減らすもの、の3パターンに分けられる。カオス位相による混合は  $Pe$  数に依存せず、装置構成がシンプルであることから分析化学利用ではパッシブ制御型が採用されることが多い。実際の機器では安く、使いやすくすることが重要であるため、流体の駆動には単純な圧力による動力が望ましく、動くパーツは少ないことが理想的である。一般的に拡散距離は、ペクレ数 ( $Pe$ ) $\times$ 代表長さ程度になる。 $Pe$  数を以下に示す。

$$Pe = UI/D \quad (1.10.)$$

ここで、 $Pe$  数は、対流と分子拡散の比であり、 $U$  は代表速度、 $D$  は分子拡散係数、 $l$  は代表長さである。一般的なマイクロチャンネルの流れでは  $Pe$  は 100 以上のオーダーであり、 $\mu$  スケールでは混合距離が非常に長くなる問題がある[26]。Stroock らは流路底部に Fig. 8 で示すようなリッジを施すことで、壁面に生まれる流体せん断力を空間的に制御している。低  $Re$  数である場合もカオス的な流れを起こすことで大幅な拡散距離の短縮に成功している[26]。カオス流れとは、式 (1.11) で示すように軸方向の位置を関数とした場合に、近接した二点間の軌跡が指数関数的に増大していく現象を示す。

$$\Delta r = l \exp\left(-\frac{\Delta y}{\lambda}\right) \quad (1.11.)$$

ここで  $l$  は横断距離,  $\lambda$  は環境定数である. カオス流れでは, 流れが進むにつれ流れの軌跡が複雑なフラクタルになっていき, これは指数的に発展する. この現象は比較的新しい研究であり, 近年精力的に研究されている. よく知られた現象として, レイリーベナール対流などもカオス混合のひとつである. 流れが周期的, 規則的であっても混合の様子が予測不可能という特徴がある. マクロスケールではいくつかのカオス流れが報告されているが, Stroock らは初めてカオス流れを  $Re$  数が 1 前後の系で起こすことに成功している. 流路はフォトリソグラフィで作成される. フォトリソグラフィとは感光性の樹脂などに部分的に露光してパターンを形成する手法であり, 半導体素子, プリント基板, ディ스플레이パネルに利用される. Fig. 8 のパターン構造はライフル管の形状と類似している. この構造は粘性流れに対して異方的な抵抗を示すため, 種々の機器に応用される. 流体がリッジに対して平行に流れる場合は抵抗が少ないが, 直行した方向では圧力がうまれる. この異方性により圧力勾配が生まれ, らせん状の流れが生まれる. カオス混合起こすマイクロミキサーは他にも多くの形状が提案されている. 多くは  $Re$  数が 5 を超える系でより適用性が高い. 先行研究で提案された流路形状を 8 点示した画像を Fig. 9 に示す[11]. このように, 流路形状を工夫することで対流を起こし, 混合を促進する.

Koch, Jackman らは合流時に 2 液が複数の層状になるように流入経路を設計することで, 必要な混合拡散距離を短縮し, 混合を促進することに成功している[27],[28]. これを Parallel lamination micromixer と呼んでいる. 流路のモデル図を Fig. 10 に示す. He, Munson らは流れを分割・合流させることで混合を促進する流路を開発している[29],[30],[31]. 流路のモデル図を Fig. 11 に示す. これを serial 型マイクロミキサーと呼んでいる. 混合には主に拡散によって進行するため,  $Pe$  数と  $Re$  数は共に低い傾向がある.

Miyake らはノズルアレイを用いたマイクロミキサーを開発している[32]. 主流流れに対し, 多数のノズルアレイから混合液を湧き出させることで混合をすすめる. Fig. 12 に装置のデザインを示す. ただし, 水を利用した場合, 流量  $10\mu\text{l}/\text{sec}$  のとき約  $2\text{kPa}$  の圧力損失があると報告している.

Fu らはハート型のチャンバーを流路中に 2 つ配置することで混合を起こす流路形状を開発している[33]. この特徴的な形状は台湾の伝統的な漁業で用いられる罟の形から着想

を得ている。ハート型のチャンバー中に渦状の流れが発生することで合流部に二次的な流れが働き、混合を促すことができる。Fig. 13 に形状を示す。

以上のように、パッシブマイクロミキサーにも様々なタイプが存在する。制御はあらかじめ流路に特徴的な形状を持たせる必要があるため、流路の構築は後から操作を変更することができない。流れの分割と合流を行う複雑な形状は、3次元的な構造を持つため、製造コストもかかる。また、複雑な形状であることから圧力損失が大きくなるデメリットがある。また、自励的なカオス流れを起こすために流量を大きくする必要があるので、さらに圧力損失が高くなりやすい傾向がある。

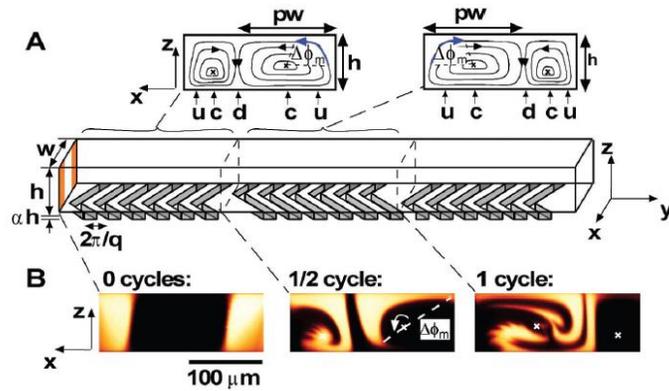


Fig. 8 Stroock らによるパッシブ制御マイクロミキサーの流路[26]

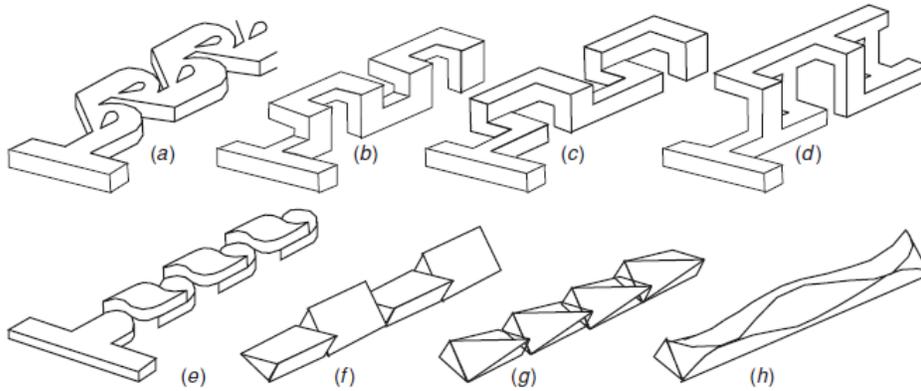


Fig. 9 パッシブ制御マイクロミキサー カオス混合を利用する流路[11]

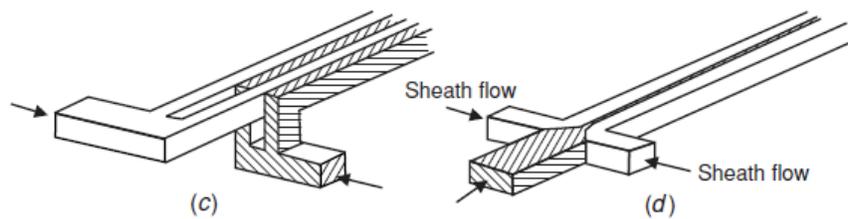


Fig. 10 パッシブ制御マイクロミキサーの例 Parallel lamination micromixer [11]

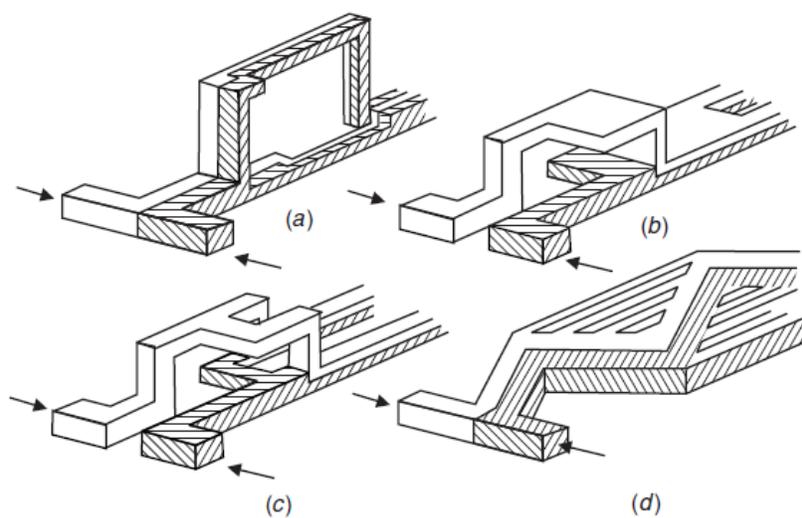


Fig. 11 パッシブ制御マイクロミキサーの例 serial型 [11]

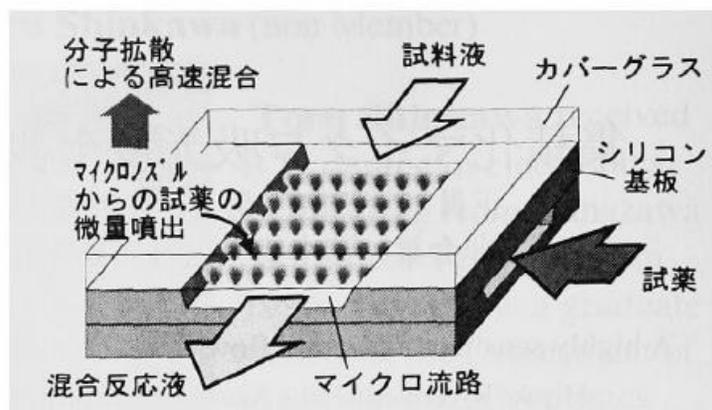


Fig. 12 Miyakeらによるノズルアレイ型パッシブマイクロミキサー[32]

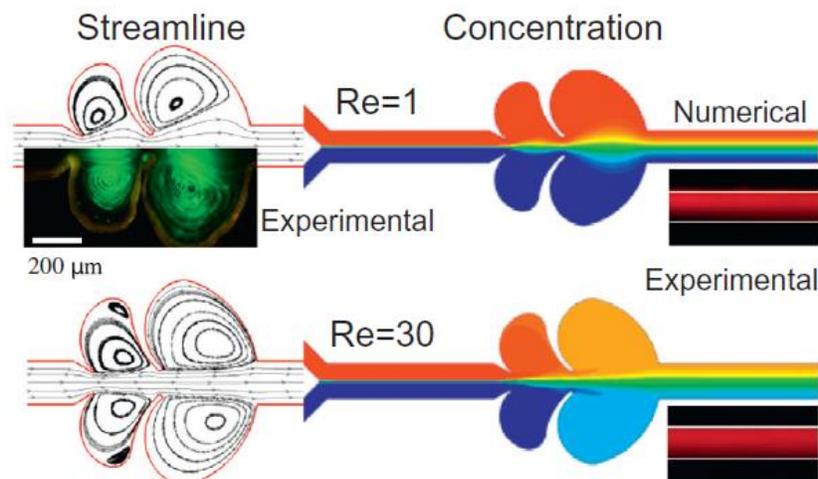


Fig. 13 ダブルハート型のリアクターを持つパッシブ制御マイクロミキサー[33]

#### 1.3.8. 表面張力を利用したパッシブ制御型マイクロミキサー

マイクロスケールでは表面張力の影響が強くなる。この性質を利用し、山田らは意図的に気泡をマイクロチャンネル中に位置させ、濃度勾配によって発生する表面張力対流が起こす渦流を利用して混合を試みている[8]。混合に有効な渦流が発生することが示されている。この対流は濃度差が均一になるまでの時間発生し、2液の流速比を変えることで渦流の発生時間を2秒程度に長くすることに成功している。安定した渦流を発生させるための諸条件を揃える必要がある。

#### 1.4. マイクロソーティング技術

動物の細胞は無数の情報を持ち、これらは不均質に分布する。たとえ同じ種類の細胞を同じ理想的な環境で培養した場合でも、違った特性やたんぱく質を合成する。これは細胞の分化・がん細胞の増殖に関する研究などで注目される現象である。このため、細胞の分析はドラッグスクリーニング、幹細胞研究、がんの研究に非常に重要である。細胞分析において、迅速かつ正確な細胞のソーティングは重要である。細胞ソーティングとは、不均一で複雑な細胞の混合物から種類や特性をもとに分別する技術である。多くの研究ではこの細胞ソーティングが細胞生物学や細胞病理にとっての根幹技術であると指摘している[34][35]。例えば、バイオプリンティングや細胞パターンニングにより目的の機能を持った細胞組織を作ることが容易となる[36]。血液から赤血球と白血球を分離し、それぞれについて分析を行うことは病理診断において重要である。また、幹細胞から分化した目的の性

質をもつ細胞を選別して集めることは再生医療の観点からも重要である。これらの理由から、多くのソーティング技術が提案されている。一般的によく使われてきた技術には fluorescence-activated cell sorting (FACS), magnetically-activated cell sorting (MACS), 遠心分離法などがある。しかし、これらには細胞ラベリングが必要であったり、大きなサンプル体積を必要とする点、コンタミネーションや長い運転時間、運用コストが高いなどの問題がある。このため、マイクロ流体制御技術により細胞ソーティングをする技術の研究が活発に行われている。マイクロ流体制御による細胞ソーティングの利点には、必要なサンプルが少なく良く、小型化、自動化が期待できる、機能を積層し、他の技術との併用が容易である、臨床即時検査の実現が期待できるなどの利点がある。一方で、分析速度が速くはないため、臨床即時検査の場合、ターゲットの細胞の存在確率が非常に低い場合、分析が遅くなる問題がある。このため、高速な細胞ソーティングの実現に向けた研究が盛んにおこなわれている。マイクロミキサーと同様、ソーティング技術にもアクティブとパッシブ制御が存在する。Shen らのレビュー論文では精密なソーティングか、大量のソーティングが可能かという点で分類している。その中で、精密なソーティングは細胞一つ一つを認識し分類するもので、アクティブ制御法のみが存在する。大量のソーティングが可能なのは、細胞の純度を高めることに利用され、アクティブとパッシブ制御法のどちらもが存在する。Fig. 14 に Shen らによるマイクロ流体制御によるソーティング技術の分類を示す。

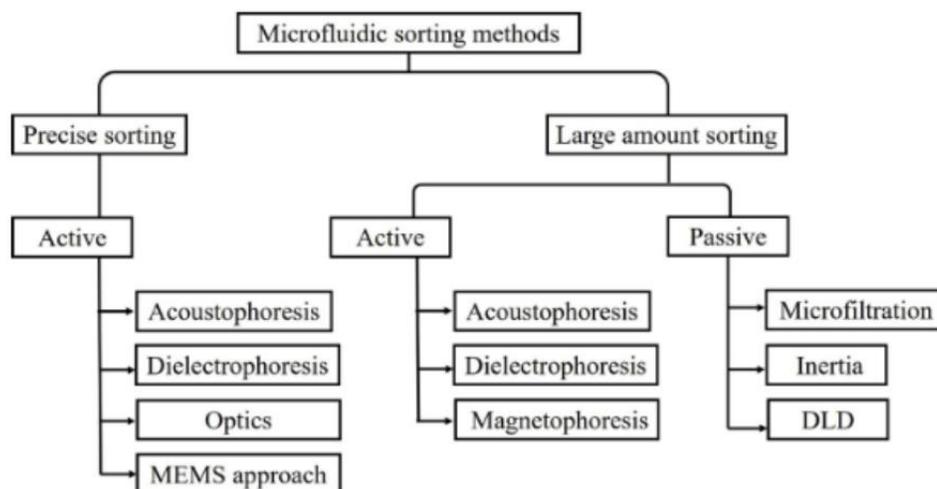


Fig. 14 Shen らによるマイクロ流体ソーティング技術の分類[35]

ソーティング技術には一般的に、検出と駆動の二つのシステムを持つ。検出には一般的に細胞の蛍光標識が用いられる。それに対し、種々のアクチュエーターを用いて外力を加え、細胞を任意の場所に動かす。マイクロソーティング技術についてレビューを行う。

#### 1.4.1. 精密なマイクロソーティング技術

精密なマイクロソーティング技術にはアクティブ制御を用いることが一般的であり、それには音波や誘電泳動、光学装置、MEMS などを使った手法が存在する。

Acoustophoresis 法は、音波による圧力変動を利用する。シート状の素子をチャンネル中に配置し、音波による定在波を発生させる。粒子の大きさによって固有振動数が異なるため、特定の大きさの粒子や細胞を駆動することができる[37]。駆動距離は細胞のサイズ、比重、細胞の圧縮性によって決まる。この技術の利点は、非侵襲であり、装置の持ち運びがしやすい点である。欠点として、サイズによってソーティングを行うため、 $1\mu\text{m}$  以下の粒子の場合は高周波と高出力が必要になる。これはマイクロチャンネルを高熱にする恐れがある。

誘電泳動は、不均一な電場で電氣的に分極した粒子を駆動する方法である。ほとんどの浮遊細胞は帯電するため、誘電泳動で駆動することができる。しかし、作動液は電解液である必要があるため、血液そのものや栄養液に浮遊した細胞に適応することはできない。また、誘電泳動特性を細胞ごとに調査する必要がある。また、高電圧を印加するため発熱を考慮する必要がある。

レーザーなどのビームを使用した制御法は広く用いられている。レーザーによる制御には3つの利点がある。第一に、レーザースポットを $1\sim 20\mu\text{m}$ 程度に制御できること。第二に、出力の選択により適切な外力を加えられること。第三に細胞を破壊することのない、生体適合性があることである。これらの利点から、多くの応用がなされている。レーザーの利用には大きく分けて二種類があり、直接レーザーの力を利用するものと、キャビテーションバブルを発生させる方法がある。なお、キャビテーション駆動は、安定性や効率、現象の時間発展性などがボトルネックであり、現在はコンセプト段階であり、実用化はされていない。Quらはレーザーを用いてマイクロピンセットを開発した。ソートした細胞が420日後も生存していることを確認し、生体適合性が高いことを示している[38]。

ただし、レーザーの利用はマイクロ流体システムの小型化や低コスト化において欠点である。

MEMS (Micro electro mechanical system) とは、電気や機械的なシステムを内包した微小な装置のことをいう。MEMS を利用したソーティング技術として、ピエゾアクチュエータや蒸気バブルを利用したものがある。Cheng らは圧電素子を二つ使い、流体を押し出すことで任意の流路に細胞をソートする方法を提案している。Fig. 16 に図を示す[39]。ピエゾアクチュエータはコストが安く、反応時間も短い。また、手に入りやすいためシステムの組み込みが容易である。Wijs らは高度に制御されたパルスレーザー加熱により発生するジェットバブルを用い、連続的かつ高速なソーティングを実現している[37]。一方で、機器の小型化が難しく、また、パルスレーザーは一般のレーザーに比べても高価であるなどの問題がある。

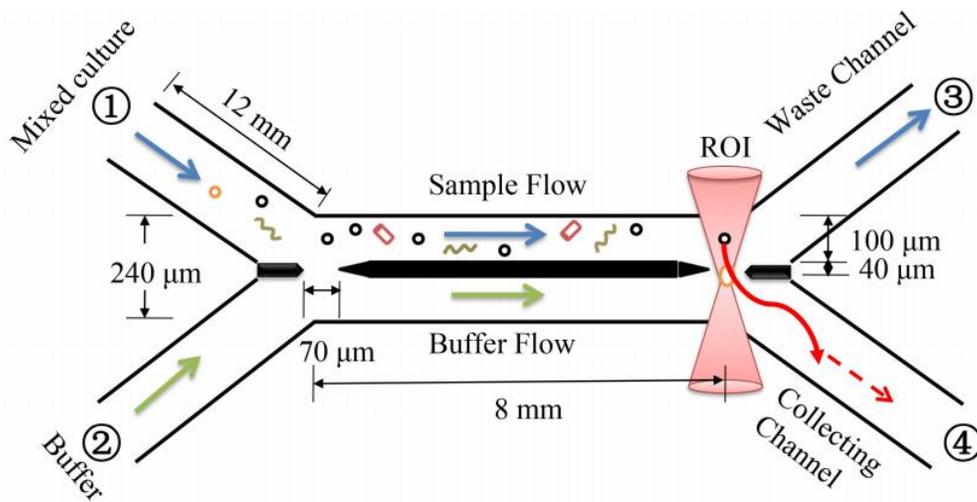


Fig. 15 Qu らによるレーザーを利用したマイクロピンセット [38]

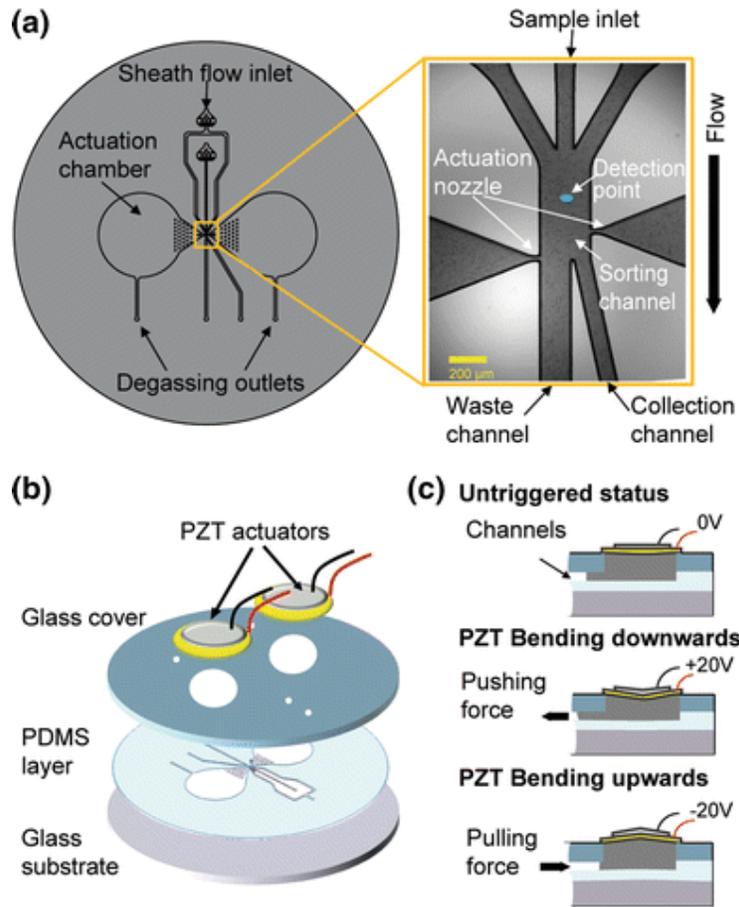


Fig. 16 Cheng らによる圧電素子によるソーティング[39]

#### 1.4.2. 大量処理型のマイクロソーティング技術

前項で説明した精密なソーティングと異なり，大量処理型のソーティング技術は単一細胞の操作はできない．しかしながら多くの細胞を処理できる．また，計測対象ではない一部の細胞を分離したり，流路中に細胞を整列させたりできる．精密なソーティングと異なり，アクティブ制御とパッシブ制御が存在する．

アクティブ制御には前項と類似して，音波，誘電泳動，磁力を利用したものがあげられる．Martin らは目的の細胞に磁性ビーズを吸着させ，これに磁場をかけることで血液からマラリアに感染した赤血球を取り出すことに成功している[40]．しかし磁場を用いる方法は適応が複雑であり，目的細胞に磁性ビーズを吸着させなければならず，また後から磁性ビーズを除去することも困難である．

パッシブ制御には、マイクロフィルタリング、慣性法、DLD (Deterministic Lateral Displacement) 法があげられる。マイクロフィルタリングは最もベーシックな手法である。高い効率であり、シンプルな構造、かつ粒形の精密な制御が可能である。構造によって大きく4つに分類でき、堰型、柱型、クロスフロー型、膜型があげられる。

### 1.5. 粘性によるマイクロ流体制御技術

マイクロスケールでは粘性や表面張力が支配的になる。このため、局所的な粘性や表面張力を変化させることで流体制御を試みる例がある。表面張力をマイクロミキサーとして利用する例は上述の通りであるが、本頁では粘性制御について紹介する。Motosukeらはマイクロチャンネル中の液体に集光したスポット光を局所的に入射させ、局所的な加熱を行うことでマイクロチャンネルの流動制御を試みている[10]。Fig. 17は集光による局所加熱によって温度場とともに速度場が変動している様子を示した図である。流路中央部で温度が上昇しており、同時に局所的な速度が速くなっていることがわかる。これは式(1.7.)で示したように、粘性が変化することで圧力に対する抵抗が空間的に不均一となるためである。この現象を利用し、内部のマイクロチャンネル内部の液滴操作に成功している。マイクロスケールでは粘性を利用した流体制御が可能であり、また粘性を考慮に入れて現象を考察する必要があるといえる。

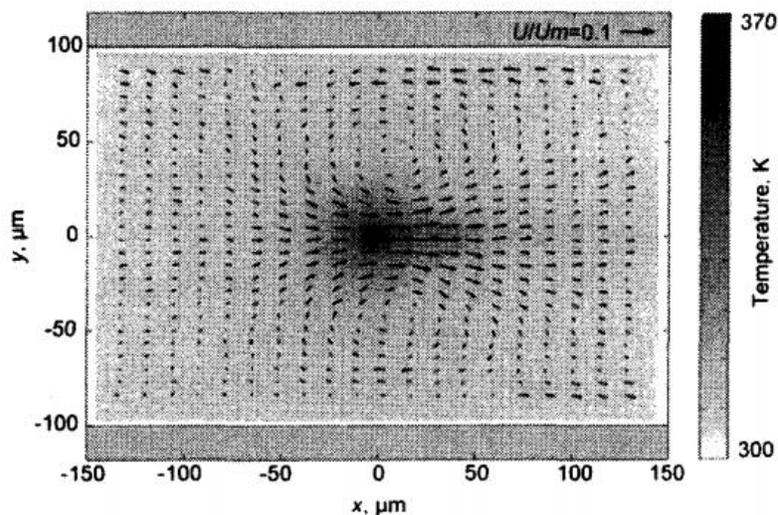


Fig. 17 局所加熱によって温度場と速度場が変動している様子[10]

## 1.6. 本研究の目的と位置づけ

以上の研究レビューより，微細な流路内部に力を加えるために種々の試みがなされてきたことがわかる．このために，内部に微細な加工を施したり，外部動力を流路内部に伝えるための副流路の作成や，微小デバイスの作成と挿入を行っている．これはシステムコストの増大と，故障の際の点検や不具合箇所の特定，修理が困難である．また，特に  $\mu$ -TAS は使い捨てチップを使うことが想定されているため，一つ一つはなるべく安価で簡易に作成可能であることが望ましい．

そこで，本研究では温度による非接触マイクロ流体制御技術の実現可能性に注目した．熱エネルギーを利用できれば，チップの外部からペルチェ素子やヒーター等で熱を加えるだけで，非接触で流体混合やソーティング等が実現できる可能性があり，マイクロ流体デバイスをより簡易に利用できると考えられる．また， $\mu$ -TAS などの生化学用途では温度制御により反応を促進する処理が想定されており，既にある温調システムを流用することで流体制御が可能であればシステム全体のコストを削減可能であると考えられる．また，必要に応じて装置の外側からシステムの改変が可能である．流路内壁がシンプルな形状となることで，圧力損失を抑えることができ，工業化の際には品質の安定性にもつながりやすい．

先行研究では温度と微小流動場の関係に着目した例はほとんど存在しない．マイクロスケールの流動は容器の温度に影響され，一様温度が保ちやすいことから，精密な温度制御が可能であることがメリットの一つである．また，温度差があったとしてもマイクロスケールでは自然対流の影響がほとんど無視できると考えられているため，このスケールで熱流動特性に着目した例は多くない．また，意図的に行わない限り，マイクロチャンネル内で局所的な温度勾配が発生することはあまりないため，温度勾配による流動のダイナミクスに着目した例は多く存在しなかったといえる．しかし，粘性や表面張力は温度に対する変化が密度よりも大きいことが多い．このため，粘性の影響が顕在化しやすい低  $Re$  数領域では，本来温度の影響を受けて状態が変化しやすい系であるとも考えられる．上述したように先行研究においても局所的に粘性を変化させることで流動の制御を試みる例があった．粘度の空間的な不均一によりマイクロチャンネル特有の熱流動特性が発生する可能性もあるが，マイクロ領域とマクロ領域の中間的スケールにおいては自然対流の影響が遷移的に変化する領域があると考えられる．一般的にマイクロスケールの定義は人によって異

なる場合もあるが、マイクロ・ナノ熱流体ハンドブックでは、1~1000 $\mu\text{m}$ とされている[9]。1000 $\mu\text{m}$ 前後をマイクロとするかは研究者によって異なり、はっきりとした定義はされていない。この領域に注目して熱流動特性を研究した例は多くないことを先行研究のレビューで示したが、定義があいまいな点からもこれまで注目されてこなかったといえる。本研究はマイクロスケールの定義の中でも最大と考えられる1mm断面の矩形のチャンネル内部における熱流動特性に着目した。この域はマイクロとマクロの中間的な性質を持つと考えられる。また、この領域が熱流体の視点から粘性支配であるか重力支配であるかはあいまいである。Table 2は先行研究におけるアクティブマイクロミキサーのサイズをまとめたものである[11]。アクティブマイクロミキサーは内部に装置を組み込む必要性から大型化しやすく、“マイクロ”ミキサーと銘打っていても1000 $\mu\text{m}$ を超えるものが多く存在することがわかる。このため、本研究が注目するエリアについても、先行研究のアクティブマイクロミキサーと比較して大きすぎるわけではない。熱を利用できれば非接触制御が期待でき、小型化の点でも有利であるといえる。本研究では計算は連続体として行うため、この点ではマクロとして扱う。実際に温度差対向流を観測し、その流動特性と、マイクロミキサーやマイクロピペットとして利用する可能性を検証する。

**Table 2** 先行研究におけるアクティブマイクロミキサーのサイズ[11]

First author	Year	Disturbance	Channel width ( $\mu\text{m}$ )
Deshmukh	2001	Pressure	400
Fuji	2003	Pressure	150
Glasgow	2003	Pressure	200
Okkels	2004	Pressure	200
Suzuki	2002	Pressure	160
Lu	2002	Pressure	750
El Moctar	2003	Electrohydrodynamic	250
Deval	2002	Dielectrophoretic	50
Lee	2001	Electrokinetic	200
Oddy	2001	Electrokinetic	1000
Tang	2002	Electrokinetic	500
Bau	2001	Magneto hydrodynamic	4700
Moroney	1991	Acoustic	1000
Rife	2000	Acoustic	1600
Yasuda	2000	Acoustic	2000
Yang	2001	Acoustic	6000
Liu	2002	Acoustic	15 000
Yaralioglu	2004	Acoustic	300

Xu[41]らは、T字チャネルの熱混合の特性を調査しているが、進行距離に伴う温度に着目しているのみであり、3次元的な流動には着目していない。定常的な温度場をつくり、瞬間の状態を捉えている。本研究は、まずこの系で発生する熱流動を広く検討するため、3次元的に過渡的な流動場を計測する。この際発生した特徴的な流れについて実験と計算を用いて詳細を調査し、マイクロ流体制御技術としての有効性を考察する。

以上より、本研究の目的をまとめると以下となる。

- **3次元的な**微小スケール熱流動場の特性を明らかにする
- 熱制御によるマイクロミキシングの有効性を明らかにする
- マイクロミキサーとしての適応範囲、特性を明らかにする

## 1.7. 本論文の構成

本論文の構成について説明する。Fig. 18に本論文の流れを示す。1章において先行研究と本研究の目的について説明した。2章において、本研究で使用したマイクロスケールにおける速度と温度計測法について説明する。3章において、実際に計測された熱流動現象について実験結果を説明・考察する。一つの現象はペルチェ素子の運転中に定常的に発生し、もう一つはペルチェ素子を運転させる瞬間に一時的に発生した。これらの現象の発生メカニズムの解明と、非接触なマイクロ流体制御法として有効であるか確認するため、それぞれの特性を実験的に調査した。4章において、数値計算を用いてメカニズムを明らかにし、マイクロミキサとしての効率評価を行った。マイクロ流体制御技術としての適応範囲を明らかにした。5章では、ペルチェ素子を駆動した瞬間に発生する急速な速度変動についてまとめた。実験により得られた特性について報告し、その後メカニズムを明らかにした。最後に得られた結果から本研究のマイクロ流体制御技術としての有効性について考察する。6章において、本研究の目的に対し得られた結論についてまとめる。

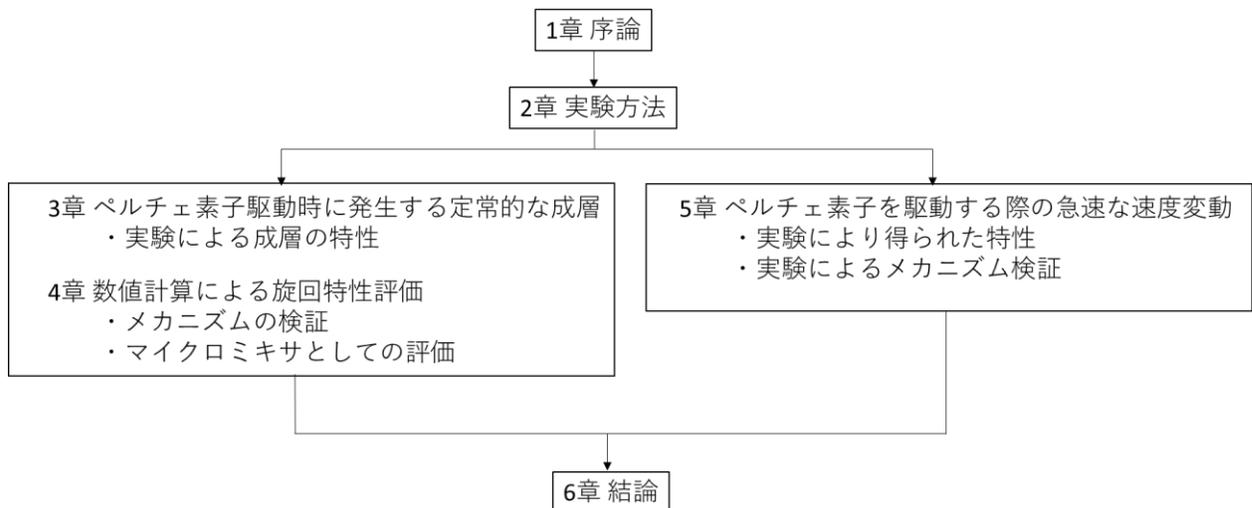


Fig. 18 本論文の流れ

## 2. 実験方法

本研究では、T字サブミリチャンネル内部の速度分布と温度分布の計測を行う。光学的可視化手法を用いて2次元的な情報を得る。本章では装置の構成と、使用するペルチェ素子などの原理、また実験方法について説明する。

### 2.1. 本研究で用いる T 字チャンネル

温度差対向流の混合を観察するために、アルミ製 T 字サブミリチャンネルを作成した。従来の生化学用途のマイクロミキサーは、ガラスや樹脂等で作成されることが多く、T 字チャンネルを金属で作成した例は多くない。本研究では熱が微小流れ場に与える影響に着目するため、チャンネル材料に熱伝導率の高い金属を選定した。T 字チャンネル本体の図面を Fig. 19, Fig. 20, に示す。このチャンネル本体は流路部と、それを密閉する蓋部の二つに分けられる。Fig. 19 に示すように、流路部の表面には T 字チャンネルを掘り、裏側にはペルチェ素子用のザグりを配置した。流路に対して 0.5 mm のアルミの壁を隔てて、ペルチェ素子による加熱冷却を行う。これによって T 字流れの合流部に温度差を形成させる。2 つのペルチェ素子の間隔は 1 mm とした。表面に掘った T 字流路の末端は裏面へ流出するように垂直方向に貫通させ、裏面に No.10-32UNF メネジの穴を施した。No.10-32UNF メネジ穴には外径 1.6 mm の PTFE 製シリンジチューブ(ハギテック: QLP1-P450P)を PEEK 製アダプター(ハギテック: PS6601)を介して接続する。T 字の左右両端からシリンジポンプを用いて、作動流体を流入させる。

蓋部は Fig. 20 のように作成し、窓部から T 字合流部を観察できるようにした。また、スライドガラスをはめるザグりを作成した。スライドガラスをサンドイッチする形で、蓋部と流路部をネジ止めし、可視化可能な T 字流路とした。流路の構成のイメージ図を Fig. 21 に、実際の写真を Fig. 22 に示す。チャンネルの表面は可視化計測の利便性のため、黒アルマイト処理を行った。合流前流路幅・合流後幅・流路深さの組み合わせを変化させ、4 パターン作成した。流路のパターンを Table 3 に示す。本研究でははじめに幅 1mm、深さ 1mm の流路について実験を行う。合流前、合流後の流路は共に同一の断面積であり、合流部は縮流となっている。ペルチェ素子を運転すると冷却側と加熱側で一定の温度差が生じるが、運転の際にジュール熱によって全体の温度が上昇していく。このため加熱面を冷却する必要がある。本研究では水冷ヒートシンクを、流路の冷却に使用しているペルチェ

素子の加熱面に圧着させた。水冷ヒートシンクには室温付近である 25°Cの水を循環させた。一方加熱に使用しているペルチェ素子は、冷却面にラバーシートを圧着し、断熱した。

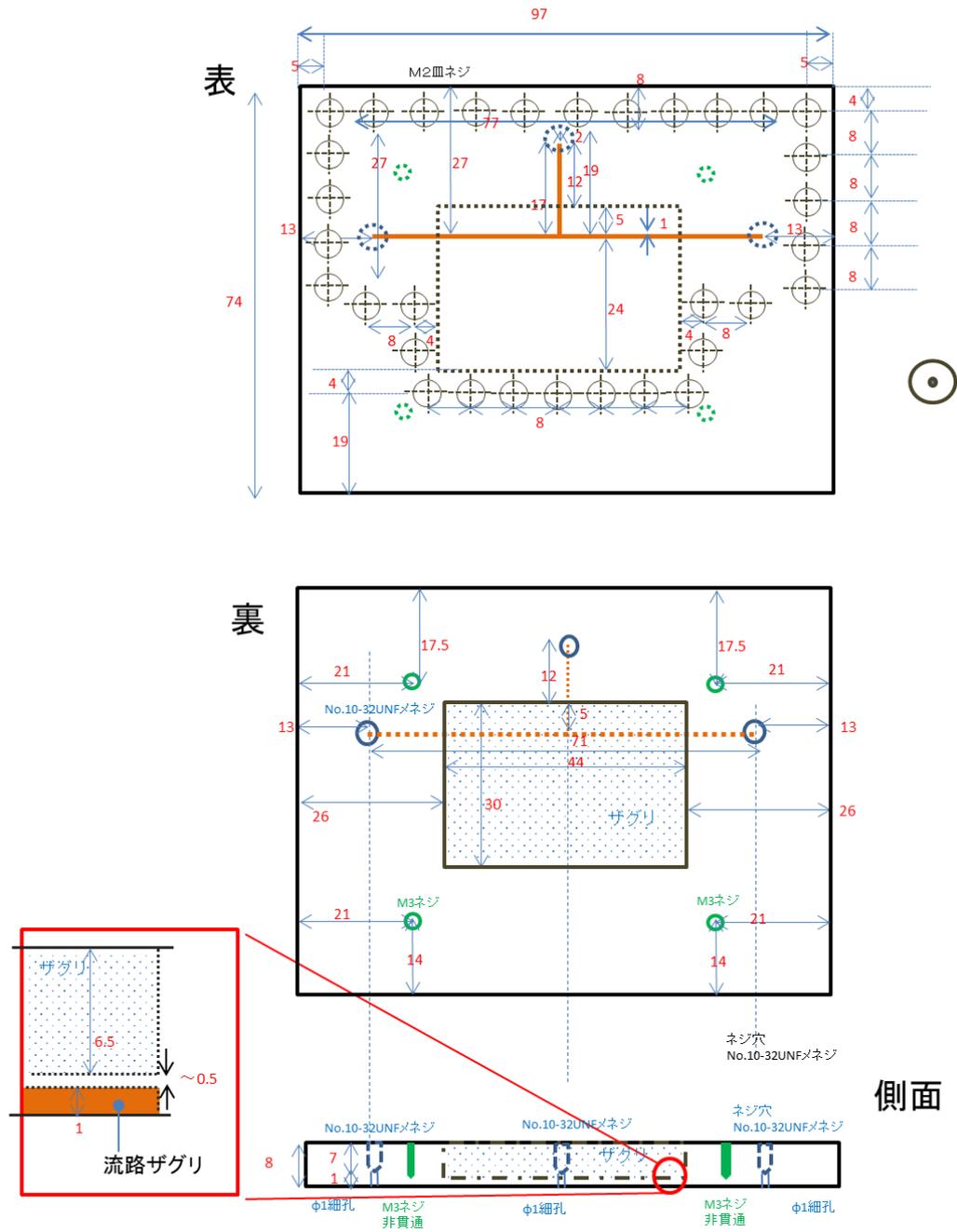


Fig. 19 流路掘削板の図面

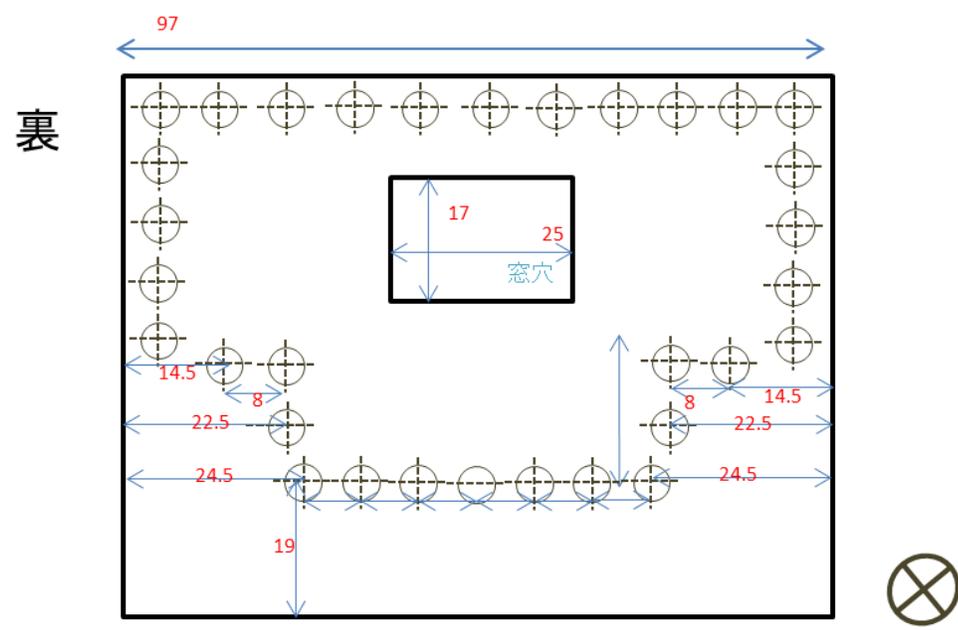
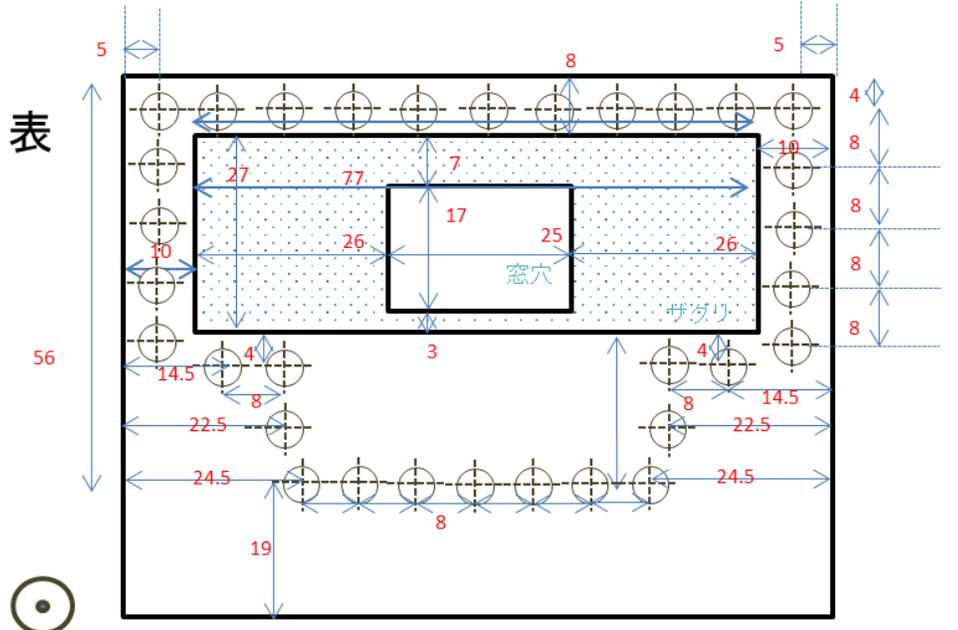


Fig. 20 流路蓋図面

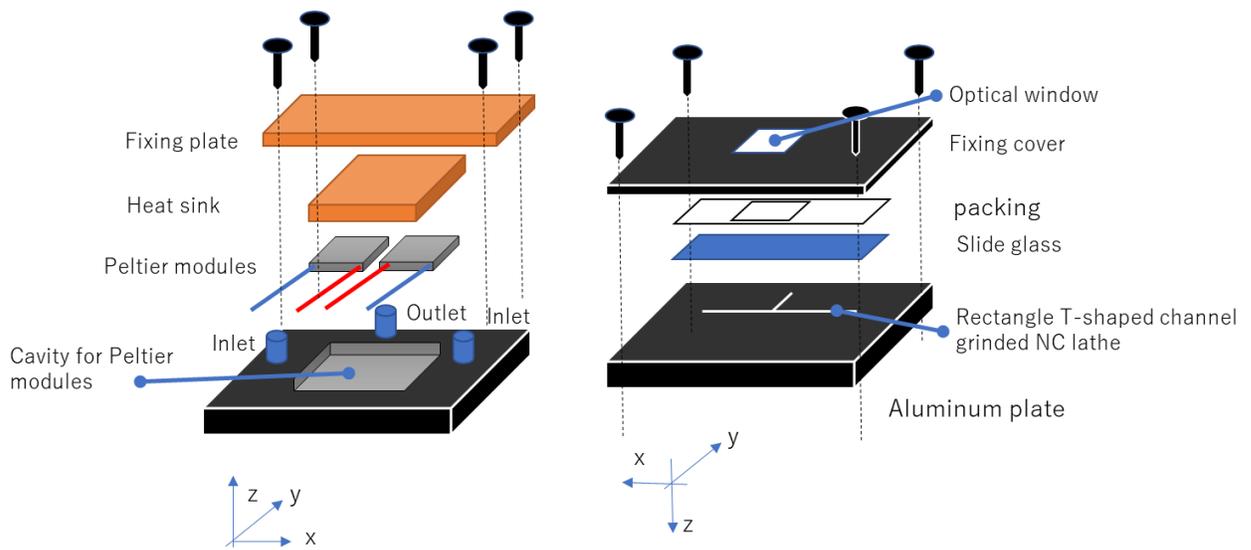


Fig. 21 流路の構成

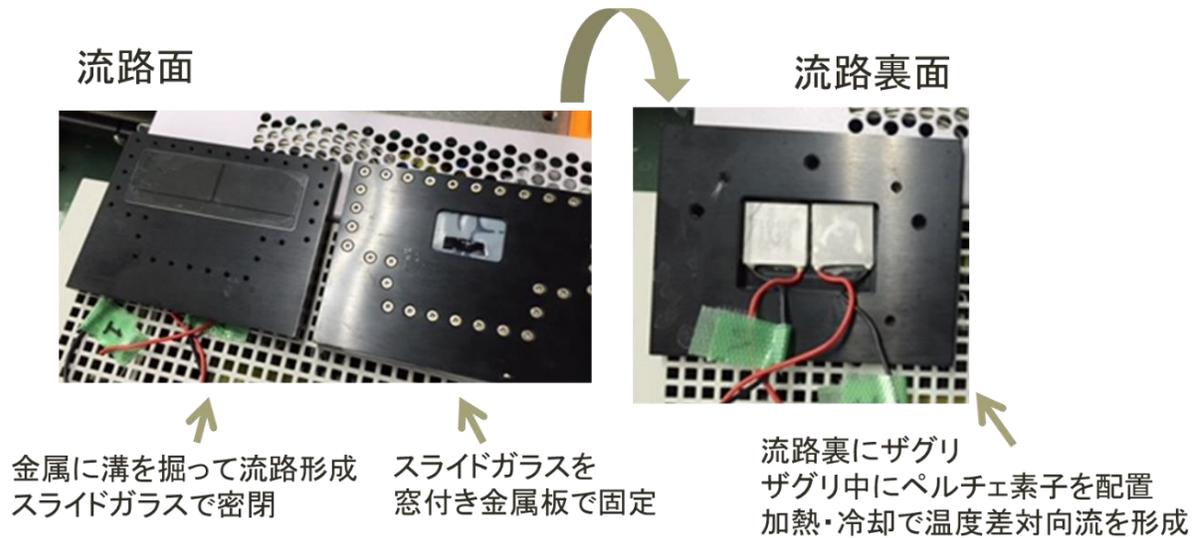
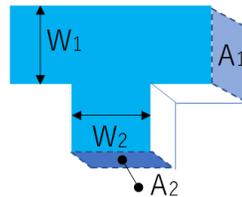


Fig. 22 流路の写真

Table 3 流路形状のパターン

Channel No.	Type	$W_1$ [mm]	$W_2$ [mm]	Depth [mm]	Contraction ratio [ $2A_1/A_2$ ]
1	Reference	1	1	1	2
2	Narrow	0.5	0.5	1	2
3	No contraction	0.5	1	1	1
4	Shallow	1	1	0.5	2



## 2.2. ペルチェ素子について

流路上に温度差を生じさせるには様々な手法が考えられるが、制御の簡便性や可動部等を持たない利点から、本研究ではペルチェ素子を使用することにした。ペルチェ素子は電気エネルギーを温度差に変換することができる。この現象は1934年にPeltierによって発見された。発見者にちなみ、この現象をPeltier効果と呼ぶ。Peltier効果は1対もしくはそれ以上のn型、p型半導体に直流電流を流した際に発生する。Fig. 23は一对のp-n半導体を図示したものである[42]。図上部が冷却運転される際、直流電流はn型からp型に向かって流れる。この際、図に示す温度 $T_c$ は周囲の熱を吸収することで減少する。この熱吸収は電子が低いエネルギーレベルであるp型半導体を通り、高いエネルギーレベルであるn型半導体に行く際に起きる。この吸収された熱は電子の輸送によって半導体の中を移動し、エネルギーレベルの低いp型半導体に到達した後解放される。この際の冷却量は半導体を通過した電流に相関がある。

冷却能力を妨げる要因には熱伝導とジュール熱の二種類がある。物体に温度差が生じた時、温かい方から冷たい方へ熱は移動する。このため、Peltier素子による冷却量が増えるほど、熱伝導による熱の移動量が多くなる。また、電流の二乗に比例して、ジュール熱が発生する。このため、電流を上げていくとこれ以上 $T_c$ が下がらない状態を迎えることに

なる。いかなる電流を流した際も、ペルチェ効果による冷却量が、熱伝導とジュール熱の二分の一と等しい時、冷却側の温度は熱平衡に達する。反対に、温度差が生じた際には電圧を生じる。これを Seebeck 電圧と呼ぶ。この電圧は温度差に相関を持つ。

ペルチェ素子とは固体素子であり、機械的な可動部を持たないことから、低ノイズで振動の無いエネルギー変換器として信頼を得ている。同時にメンテナンスの必要性が少ない。Peltier 素子の耐久性を調べた例では、10万時間の定常運転も可能であり、軽く小さいといった利点がある。

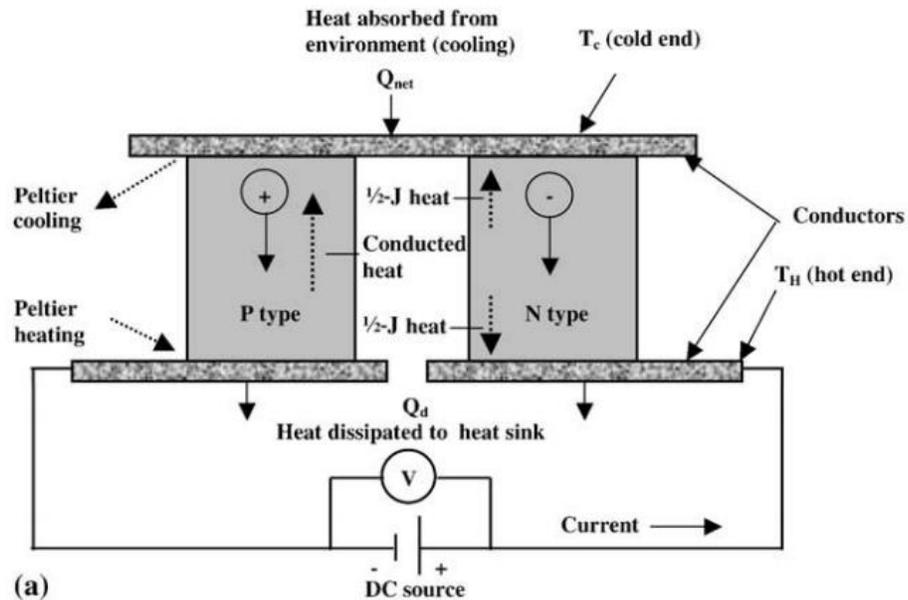


Fig. 23 Peltier 効果のモデル図[42]

### 2.3. 実験系と実験条件

本研究はまず初めに T 字合流部に温度差があったときの熱流動場を計測し、流れ場の概要を取得する。Fig. 24 にデータの取得方法について説明する図を示す。速度場計測の際は可視化用粒子を、温度場計測の際は感温染料を溶解させた蒸留水を、T 字の左右両端からシリッジポンプを用いて流入させた。流路中の観察位置を Fig. 24(a)に赤いエリアで示した。また、PIV 粒子を分散させたときの実際の映像を下に示す。粒子による輝度パターン

が形成され、これにより速度場計測が可能である。シリンジポンプによって発生する流れを図中に矢印で示した。流路と反対面にはペルチェ素子(Z-MAX: FPH1-7102NC)を2つ、熱伝導グリス(ZAWARD: MX4-4G)を塗布して貼り付け、それぞれのペルチェ素子で冷却加熱を行うことで、温度勾配をもつ流れを形成した。Fig. 24(b)に示すように、顕微鏡は倒立顕微鏡を用いた。水銀灯の発光は500-550nmのバンドパスフィルターを通し流路合流部に落射させて励起した。合流部の蛍光体の発光を倍率10倍、NA値0.3、被写界深度6.16 $\mu$ mの対物レンズ、560nmのロングパスフィルターを通し、高感度sCMOSカメラ(PCO: pco.edge)で観察した。3次元的な流れ場が発生することを想定し、Fig. 24(c)に示すように、顕微鏡の対物レンズの位置を変えることによって5断面を計測した。カメラの空間分解能は2560\*2160pixelであり、16bitの階調で計測が可能であるが、PIVでは8bit、LIFでは16bitで画像を取得した。ペルチェ素子には直流安定化電源(KIKUSUI, PMX18-5A)から電力を供給し、4~8.8Vの電圧を適用した。Table 4に本実験における電圧条件をまとめた。今後、標記の簡略化のため、冷却加熱に使用するそれぞれのペルチェを6Vで運転した場合、その条件C6H6などと定義することにした。安定化電源の出力と遮断のタイミングはパルスジェネレータで制御した。カメラの撮影タイミングも同様にパルスジェネレータで制御し、撮影のタイミングと電源の出力・遮断を全ての実験で同じになるように行った。

シリンジポンプ(KD Scientific: KDS200)の流量は、3, 4.5, 6  $\mu$ l/minの3種類を設定した。シリンジポンプは二本使用するため、合流部の流量は合流前の二倍になる。なお、流量3 $\mu$ l/minのとき、幅、深さ共に1mmの流路内部のレイノルズ数は0.0498である。

計測は1つの条件につき60秒間行う。この間に1200枚の画像を撮影した。計測開始10秒の時点でペルチェ素子に通電を行い、50秒の時点で遮断する。撮影のタイミングチャートをFig. 25に示す。

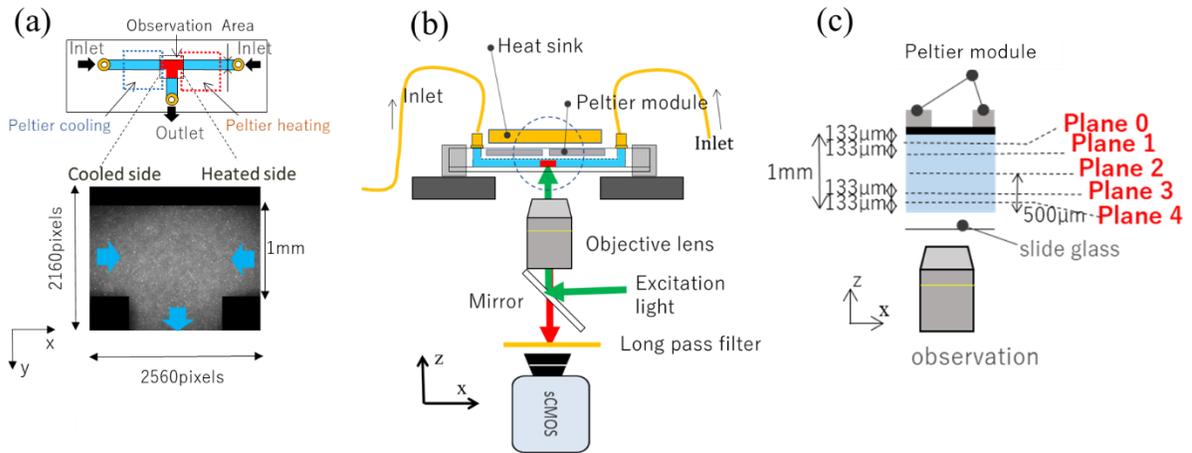


Fig. 24 実験方法のモデル図

Table 4 Power applied to the Peltier module

ID	Cool[V]	Heat[V]	Total power[W]
C6H4	6.0	4.0	19.5
C6H6	6.0	6.0	26.9
C8H6	8.8	6.0	39.9
C8H8	8.8	8.8	54.4



Fig. 25 撮影のタイミングチャート

## 2.4. 速度場計測方法

本研究では Particle Image Velocimetry (PIV)を用いて速度場計測を行う。PIV は空間的な速度分布を計測する技術として世界で広く用いられている。流れに追従するトレーサー粒子を混入させ、観察したい領域にレーザーなどの光源をシート状に照射する。レーザーにより発光した粒子群をカメラによって撮影する。時刻による粒子パターンの移動を相関関数を用いて計算することで二次元的な速度分布を得ることができる[43]。Fig. 26 に PIV の計測イメージを示す[44]。Fig. 27 に短い間隔で撮影されたそれぞれの検査領域 (interrogation window) における粒子画像のイメージを示す。二枚の画像で相関係数を計算すると、最も似たパターンが存在する領域で相関係数のピークが生じる。この位置を粒子移動量として計算する。精度よい計測のためには、interrogation window の中に粒子が3~5粒程度存在することが望ましい。

PIV では、精度と計算量の観点から、粒子の移動量が最大でも十数ピクセル程度に収まることが望ましい。ピクセル量から移動量を算出する場合、十分な精度が得られないことから、サブピクセルオーダーの計算が求められる。このため、相関係数のピーク位置をガウス近似し、このガウス関数のピークを求めることで移動量を算出する。このために、画像における粒子の大きさは3~5ピクセルを持つことが望ましい。1~2ピクセルの粒子の場合、ピークロッキングという現象がおき、移動ピクセル量が整数値に近い値を取りやすくなる問題が起きる。これは粒子ひとつひとつを追跡する PTV (Particle Tracking velocimetry) にもいえる[45]。マイクロ PIV が発達する前までは、マイクロデバイスにおける混合の評価は、Pe 数を用いて対流や拡散の支配要因を大まかに判断するのみであった。熱流体分野に携わる研究者らによって、マイクロスケールの流動現象の計測法を展開されてきた。Santiago らは、はじめて PIV 法をマイクロスケールへ拡張している。この論文は2019年10月で1486件の引用がある[46]。マイクロスケールではレーザーシートの照射が難しいことから、対物レンズの焦点位置を観察面として二次元的な PIV 計測を行う。この時 NA 値の高いレンズを使うことが望ましく、マイクロ PIV では油浸レンズを使うことが多い。マイクロスケールは微小領域を拡大して観察する必要があるため、必要な光量が大きくなる。このため、感度の良い撮影素子と高輝度の励起光源を用いる必要がある。出力の高いレーザーを用いる場合は、これによる入熱や流れの擾乱を考慮しなければならない。拡大率が大きいほど粒子の移動量が大きくなるため、撮影間隔を短くする必要がある。また、粒子が小さいほど映りにくくなり、ブラウン運動の影響を受けやすくなる。このため高輝度で良い粒子画像を得るためにいくつかのハードルを有している系であると言える。

本実験で利用する画像相関法は再帰的直接相互相関法である。直接相互相関法は局所的な輝度値パターンの類似度を、直接的な相互相関関数の定義式を用いて相互相関値の算出を行う。微小時間において2時刻の連続する可視化画像がある場合、先の時刻に取得した第1画像中の検査領域の輝度値パターンが、次の時刻の取得した第2画像中のどの位置に移動したかを、相互相関関数を用いて検出する。2種類の2次元信号 $f(X, Y)$ ,  $g(X, Y)$ を用いて相互相関係数の計算方法を示す。原関数 $f(X, Y)$ と $g(X+\Delta X, Y+\Delta Y)$ を用いて $L_0$ を領域サイズとすると、相互相関係数 $C_{fg}(\Delta X, \Delta Y)$ は次式で表される。

$$\begin{aligned} C_{fg}(\Delta X, \Delta Y) &= \overline{f(X, Y)g(X + \Delta X, Y + \Delta Y)} \\ &= \lim_{L_0 \rightarrow \infty} \frac{1}{L_0^2} \int_{-\frac{L_0}{2}}^{\frac{L_0}{2}} \int_{-\frac{L_0}{2}}^{\frac{L_0}{2}} f(X, Y)g(X + \Delta X, Y + \Delta Y) dx dy \end{aligned} \quad (2.1)$$

実際に使用する原関数 $f$ ,  $g$ は連続的には与えられないので、離散表現の定義式で相互相関係数を計算することになり、次式で表される。ただし、検査サイズを $N \times N$  pixel とする。

$$C_{fg}(\Delta X, \Delta Y) = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N f(X_i, Y_j) g(X_i + \Delta X, Y_j + \Delta Y) \quad (2.2)$$

相関関数を取るとき、値域が[-1, 1]の範囲をとる次の相互相関係数で評価する。

$$\begin{aligned} R_{fg}(\Delta X, \Delta Y) &= \\ &= \frac{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \{f(X_i, Y_j) - f_m\} \{g(X_i + \Delta X, Y_j + \Delta Y) - g_m\}}{\sqrt{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \{f(X_i, Y_j) - f_m\}^2 \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \{g(X_i + \Delta X, Y_j + \Delta Y) - g_m\}^2}} \end{aligned} \quad (2.3)$$

式中において $f_m$ ,  $g_m$ はそれぞれ第1, 2画像における $N \times N$ の検査領域内の輝度値パターン $f$ ,  $g$ の平均値を表す。FFT相関法と比較すると計算量が大きくなり、画像解析におけるパラメータが多くなるが、測定精度に関しては有利である。

再帰的相互相関法とは、例えば1度ある検査領域で速度分布を算出した後、検査領域のサイズを半分に減らし、再度速度分布を求める方法である。1回目の速度の結果を利用することで、2回目の計算は早く行うことができる。また、検査領域を小さくして再度計算することで、速度場の空間解像度を上げ、誤ベクトルを減らすことが可能である。

カメラの撮影タイミングの制御にはファンクションジェネレータを用いた。PIV計測に用いる画像の撮影間隔  $dt$  は、シリンジポンプによる平均流量が  $3\mu\text{l}/\text{min}$  のとき  $25\text{ms}$ 、 $4.5\mu\text{l}/\text{min}$ 、 $6\mu\text{l}/\text{min}$  のとき  $20\text{ms}$  として、1秒間に10セットの撮影を行った。8bitグレイスケールの画像を保存した。露光時間は  $9\text{ms}$  とした。PIVは上述のように2ステップの再帰的相互相関法を用い、各ステップの検査領域のサイズは  $128, 64\text{pixel}$  四方とし、50%オーバーラップして解析を行った。PIV粒子は粒径  $0.83\mu\text{m}$  の蛍光ポリスチレン粒子(Thermo fisher scientific: R900)を用いた。画像の大きさは横  $2560\text{pixel}$ 、縦  $2160\text{pixel}$  で、階調は8bitとした。60秒間で1200枚の画像を撮影し、2枚一組で速度場を解析することで、600セットのPIVデータを取得する。

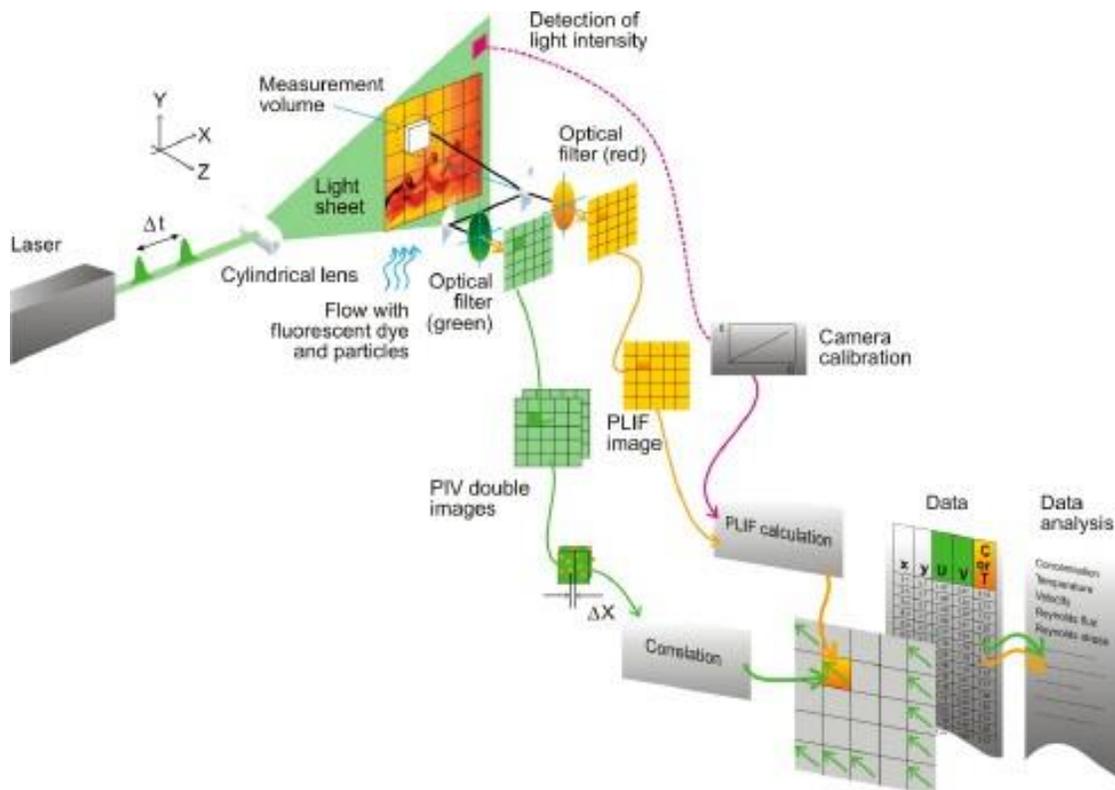


Fig. 26 PIV・LIFの計測イメージ[44]

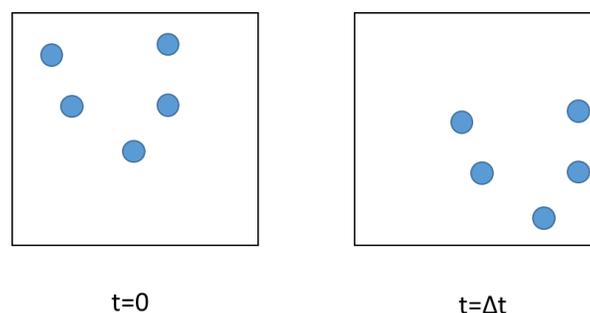


Fig. 27 短い間隔で撮影された検査領域における画像のイメージ

## 2.5. 温度場計測方法

本研究では速度場だけでなく，流路内部の温度場の計測も行う．温度計測には Laser Induced Fluorescence (LIF)法を用いた．LIF 法について説明する．

水溶性色素を用いた流体実験はレイノルズによる乱流の指摘に始まり，現在まで発展してきた．1976年に発表されて以来，二次元的なスカラー量を計測する手法として，LIFが多く用いられている[47]．レーザーで作動流体に溶解させた色素を励起することで流体の可視化を行う手法である．LIFの染料はスカラー量に発光量や蛍光寿命が依存するものが用いられ，この種類によって温度，pH場，酸素濃度場等の様々なスカラー量を計測することができる．LIFにおいて最も用いられる色素はフルオレセインと RhodaminB, Rhodamin110 等である．この吸収波長を励起可能であることからマクロスケールの LIFには YAGレーザーや 488nm のアルゴンイオンレーザーがよく用いられる．色素の吸光と放出波長は離れている事が望ましい．

光源やカメラ等が発達した現在ではカメラとシート光源を用いたマクロスケールでの二次元・三次元計測が多く研究されている．LIFは分子の電子構造や，その状態を知る上でも有用である．燃焼やプラズマ，噴射や流動の計測に用いられてきた．流動の計測では Molecular Tagging velocimetry(MTV)との併用がなされている．MTVとは，発光の寿命が長い燐光染料を液体中に溶かし，パルスレーザーを格子状などのパターンで入射させる．流れによって変化した燐光のパターンを，変化前の画像との相関係数を求めることで流れ場

を取得することができる。このとき、Huiらは燐光寿命が温度に依存することを利用して、温度と速度場を同時に計測している[48].

本研究では蛍光染料に RhodaminB を用いる。RhodaminB は LIF においてもっとも多く用いられるキサンテン系蛍光染料のひとつである。キサンテン系色素は、3H-xanthene を基とする色素の総称であり、カチオン性とアニオン性のものがある。発光色はキサンテン部位に結合した官能基によって決定される。RhodaminB はジアルキルアミノ基が結合している。一方、フルオレセインは水酸基が結合しており、緑色を示す。キサンテン系色素は、光吸収・発光強度が大きい。また、耐光性に優れており、毒性が少なく、水溶性が高い。発光が強く、安価であることから、水におけるトレーサー粒子としてもよく用いられる。バイオテクノロジーにおける生体可視化や ELISA (Enzyme-Linked Immuno Sorbent Assay)、クロマトグラフィ等にも用いられる。[49]吸収波長帯のスペクトルピークは 535nm であり、緑色の励起光でもっとも効率よく発光する。蛍光の量子効率エタノール中で 65% であり、水中においてもっとも良いケースでは 95% を越える。なお、この効率は温度によって変化する[50].

色素は励起によって、基底状態から励起状態へ電子構造が変わる。基底状態にもどる際に励起光より長波長の発光を示す。蛍光物質における最大励起波長と最大蛍光波長間の差を Stokes シフトと呼ぶ。ストークスシフトの大きいものほど、広いバンド幅で計測することができるため、使い勝手がよいといえる。よい精度で計測を行うためには高輝度の発光を得ることが望ましいが、一般的に蛍光・燐光色素は高濃度になる場合発光が減衰する特性をもつことが多い。RhodaminB の場合は高濃度になる際に分子同士で二量体を形成することで発光量が減衰することがわかっている[51].

フルオレセインはもっとも古くから用いられる蛍光色素である、発光強度が pH によって変化するため、pH 計測等が可能である。非常に明るいことから RhodaminB と同様に LIF によく用いられる。一方、RhodaminB は pH 反応性をほとんど示さないが、フルオレセインよりも光安定性が強い。キサンテン系色素は、官能基が水中で電解することによって蛍光発光を示すため、LIF では水中に溶解させる必要がある。このことから、水以外の用途には向かない傾向がある。

LIF の温度場計測原理について説明する。蛍光物質を単位微小体積で考えると、単位時間当たりに放射する光エネルギー  $I$  は、次式で表される。

$$I = I_0 C \phi \epsilon \quad (2.4.)$$

$I_0$ は励起光， $C$ は染料濃度， $\phi$ は励起光の蛍光発光の量子収率， $\epsilon$ は吸光係数である．吸光係数は入射した励起光に対して単位濃度の溶液を単位長さ通過する際に吸収される光の割合を示す．光束  $I'_0$  の励起光が蛍光染料溶液に入射し，溶液を長さ  $x$  だけ通過したところでの励起光束  $I_0$  は次式で表される．

$$I_0 = I'_0 e^{-\alpha x} \quad (2.5.)$$

これは Beer-Lambert の法則と言われる．入射した光が溶液を通過する間に吸収され減衰することを表現する．任意の体積を通過した励起光による蛍光の放射エネルギーは，上2式を用いて次式で表される．

$$I = I'_0 C \phi \epsilon e^{-\alpha x} \quad (2.6.)$$

この式より，光  $I$  は，分子の単位体積，単位時間における数に比例する．また，量子収率  $\phi$  は温度依存性があり，温度の上昇により減少する．これは，温度が上昇することで，分子の衝突によるエネルギーの消失，内部転換，系間交差が起こりやすいことためである．吸収係数  $\epsilon$  の温度依存性は小さいため， $I_0, C$  を一定とすれば蛍光強度は温度の関数となり，これを温度場計測に利用することが出来る．

実験方法について説明する． $10^{-6}$ mol/l の RhodaminB 溶液をシリンジポンプで流し入れ，PIV と同様の光学系とフィルターを用いて，全ての流量について 20fps，露光時間は 14ms として 60 秒間の撮影を行った．画像の大きさは横 2560pixel，縦 2160pixel で，階調は 16bit とした．PIV データと同様，60 秒間で 1200 枚の画像を撮影した．この発光強度の変化率を温度の指標として評価する．すなわち，温度計測と速度計測は別々に行うこととなる．ペルチェ素子の通電前の 10 秒間に撮影された 200 枚の画像について，平均画像を作成し，これを温度一様場の輝度値情報とした．1200 枚のそれぞれの画像のそれぞれの画素における輝度値を，平均画像における対応する画素の輝度値で除することによって輝度比の分布を取得する．なお，算出した LIF の輝度比分布は  $15 \times 15$  pixel の空間平均を 8pixel ごとに算出することで圧縮した．

本実験では光源として水銀灯(OLYMPUS: U-LH100HG)を用いる。水銀灯は高圧水銀ランプとも呼ばれる。広い波長帯で強い発光量があることから、蛍光顕微鏡では、フィルターを用いて必要な波長の光を選択することが可能である。また、安定性が高いといった利点がある。点灯には、高圧の電源装置が必要となる。

LIF データの前処理方法について説明する。Fig. 28 は、フォトダイオードで水銀灯の発光強度の時間変化率を計測した結果を示している。水銀灯の発光が 3.5Hz 前後で周期的に変動していることがわかる。Fig. 29 は、実際に画像中のある点において LIF の計測と算出を行った結果である。オレンジの線は、輝度比マップの中の特定の 1 点について輝度比の時系列変化を示している。データの標準偏差は 0.31% であった。LIF は 1% の輝度比変化が 1~1.5°C の温度変化に相当するため、ここでは FFT を用いてノイズ低減処理を行うこととした。Fig. 30 は、Fig. 29 オレンジで示す処理前のデータについて周波数解析をした結果である。図より、3Hz 付近にピークがあることがわかる。また、その 2 倍、3 倍波が生じていることがわかる。水銀灯の周波数成分が LIF の結果に影響を及ぼしていると考えられる。そこで、2.8Hz 以上の周波数成分をカットし、逆 FFT を行った結果が Fig. 29 に黒線で示す線である。ノイズが減っていることがわかる。データの標準偏差は 0.10% となり、3 倍程度改善された。

以上の結果より、本研究では、LIF 計測のために撮影した元画像すべてについて、FFT により 2.8Hz 以下の成分を抽出してから輝度比分布を算出した。画像の各 1pixel に着目し、撮影された 1024 枚の時間方向にフィルタリングを行った。全画素について同様の処理を行い、フィルタリング処理済の画像群を新たに作成した。

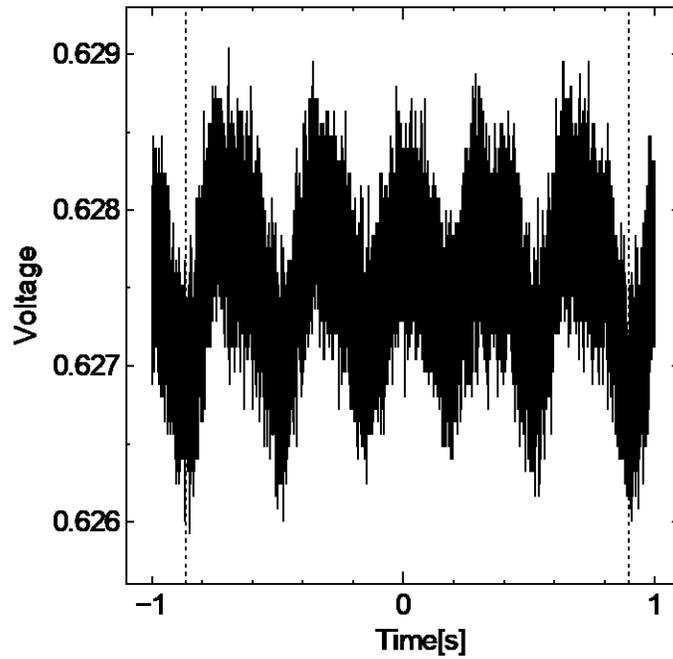


Fig. 28 フォトダイオードで計測した水銀灯強度の時系列変化

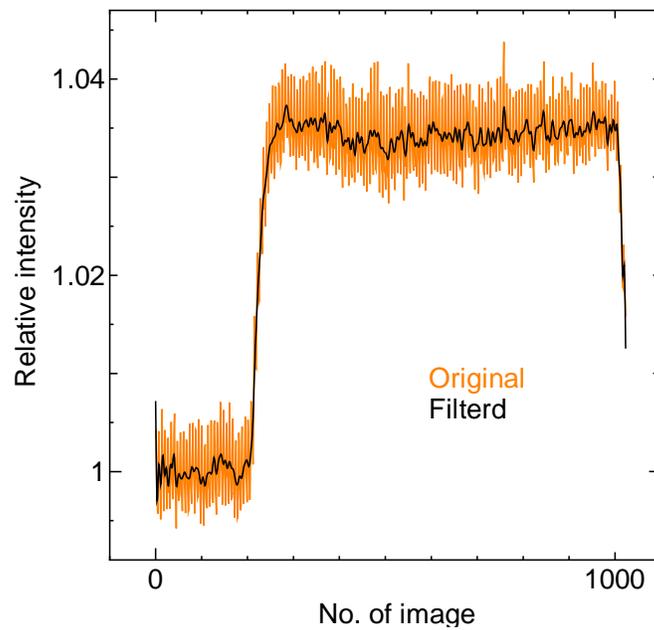
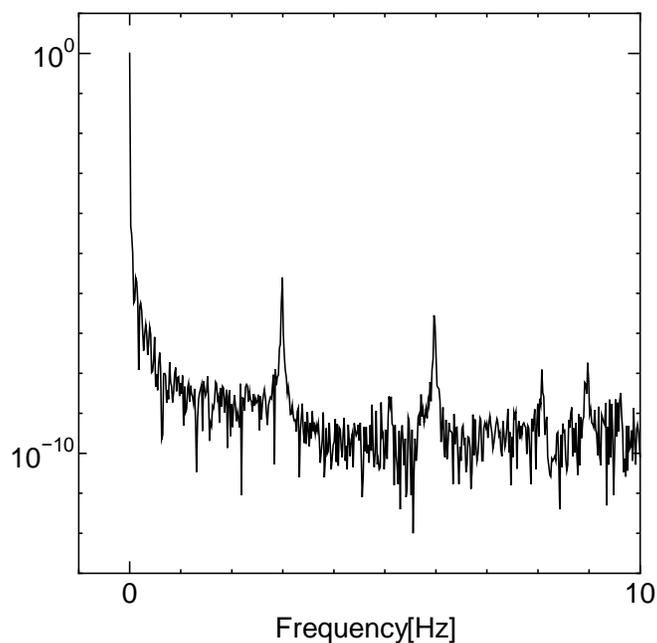


Fig. 29 あるエリアにおける LIF 取得データ：輝度比の時系列変化



**Fig. 30** 時系列輝度比変化の周波数成分

LIFデータの校正方法について説明する．染料の発光は強い光源の下で劣化する性質を持っている．光源と色素の安定性を確認するため，ペルチェ素子による温度変化を与えず，一定温度の条件のもとでLIFの計測を行った．Fig. 31において紫色で示すデータは流路中のある画素に注目した際のRhodaminBの蛍光強度の変化を示す．データは周波数フィルタを適応した後のものである．データ取得中はペルチェ素子による温調は与えず，室温一定の状態を保持した．1024枚，すなわち51秒の間に1%程度輝度が減衰することがわかる．これは水銀灯による光劣化が原因である．また，RhodaminBの輝度比が瞬間的に上下することがわかる．これは水銀灯の明滅によるものである．水銀灯は安定性の高い光源であると考えて選択したが，より正確な光学計測を行うため，明滅の影響をキャンセルする処理を行うこととした．

水銀灯の明滅の影響をキャンセルするため，本研究は温度に影響を受けない蛍光体である，LDSを流路壁面に塗った．LDSの塗布位置をFig. 32に示した．また，Fig. 31に黄土色の線でLDSの輝度比変化を示した．この図におけるLDSのデータはローダミンBのデ

一タと同じ画像から算出しているため、同時刻の輝度比を示している。ローダミン B と LDS の明滅のタイミングが同じであることがわかる。また、LDS の輝度値も減衰することがわかる。同時刻のローダミン B の輝度比の値で LDS の輝度比の値を除いた結果を Fig. 31 に緑色の線で示す。明滅の影響が軽減されていることがわかる。しかし、完全に明滅の影響がなくなるわけではなく、画像の位置によって明滅の度合いが異なると考えられる。

光劣化と明滅の補正方法について説明する。撮影した  $n$  枚目のオリジナル画像の輝度値を  $I_n$ 、LDS の輝度値を  $LDS_n$  とする。また、 $I_n$  と  $LDS_n$  の画像中の位置に対応した、平均画像における輝度値を  $I_{ref}$ 、 $LDS_{ref}$  とすると、明滅の影響を除いた  $n$  枚目の画像のある特定の画素における R 値、 $r_n$  は以下のように表される。

$$r_n = \frac{\left(\frac{I_n}{I_{ref}}\right)}{(LDS_n/LDS_{ref})} \quad (2.7.)$$

次に光劣化を補正する校正関数について説明する。実験の際には、温度場取得の前に、校正関数取得のための計測を行う。ペルチェ素子を起動させず、水銀灯による光劣化の輝度減衰の特性を取得する。温度場計測と同様の撮影条件で 1200 枚の撮影を行う。その際の LDS の輝度値を  $LDS_{ctrl\ n}$ 、流路中の RhB の輝度値を  $RhB_{ctrl\ n}$  とし、1~200 枚目の平均画像における、対応した位置の LDS と RhB の輝度値を  $LDS_{ctrl\ ref}$ 、 $RhB_{ctrl\ ref}$  とすると、校正関数は以下のように表される。

$$F_{ctrl\ n} = \frac{LDS_{ctrl\ n}/LDS_{ctrl\ ref}}{RhB_{ctrl\ n}/RhB_{ctrl\ ref}} \quad (2.8.)$$

以上の 2 式を用いて、明滅の影響と光劣化の影響を除いた R 値、 $R_n$  は以下のように表される。

$$R_n = F_{ctrl\ n} r_n \quad (2.9.)$$

この関係式を用いて、実際に x 軸方向に温度差のある場を LIF で計測した結果を Fig. 33 に示した。これについても、10 秒でペルチェ素子に入力を行い、50 秒で遮断をした。電圧条件は C6H6 である。数値と色は画像中の x 位置をピクセルで示す。補正がないとき、温度変化がないはずの 10 秒までの間も減衰によって輝度比が低下傾向にある。また、ペルチェ素子の運転中も継続的に輝度比低下が進むことがわかる。これは後述する、熱電対の温度計測結果と異なる傾向であった。また、30s 付近で明滅による輝度変化が発生した。補正を行うことで輝度減衰と明滅の影響を軽減できたと考えられる。

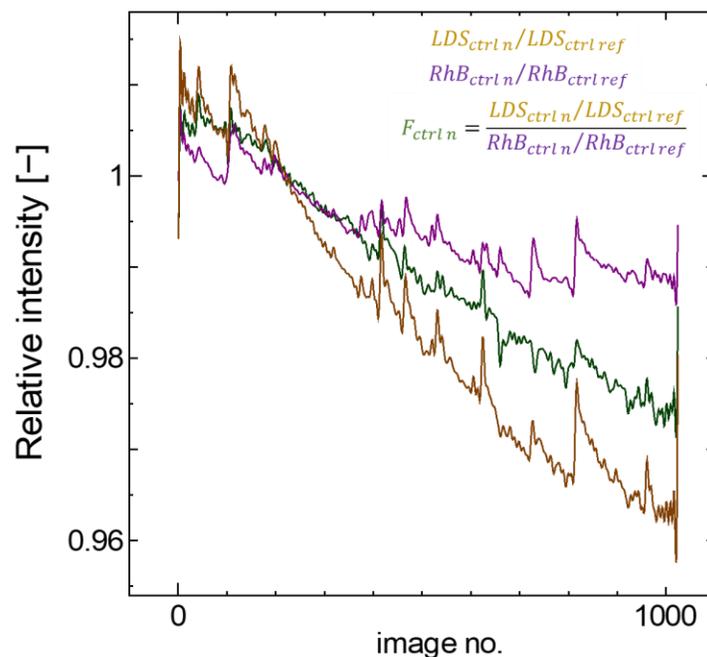


Fig. 31 LIF の校正関数取得例

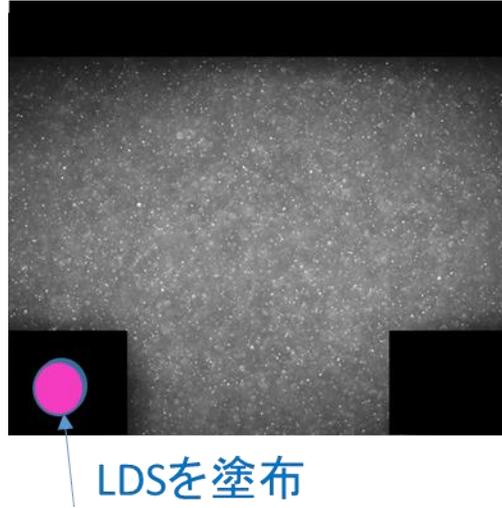


Fig. 32 明滅ノイズをキャンセルする LDS の塗布位置

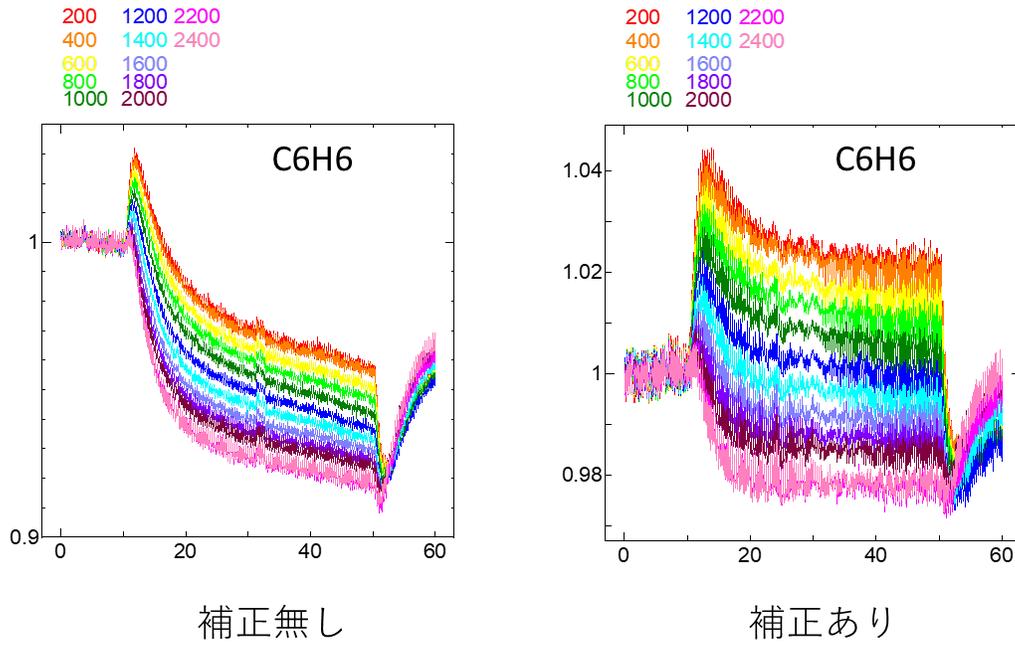


Fig. 33 LIF 補正結果

## 2.6. 熱電対によるチャンネル構造物の表面温度計測

ペルチェ素子によって生じる温度場を知るため、熱電対を用いて流路構造物そのものの温度計測を行った。合流部を中心位置として、T字の左右水平方向に5点温度を計測した。計測位置を Fig. 34 に示す。流路はアルミとスライドガラスに挟まれて形成され、アルミ側にペルチェ素子を配置しており、流路の上下方向で温度場は異なっていると考えられる。流路内部の壁面温度を取得するのが望ましいが、熱電対を流路内部に正確に配置することが難しいので、Fig. 35 に色のついた点（色は Fig. 34 の計測位置と対応している）で示す、アルミ壁表面と、スライドガラス表面について温度計測を行った。測定には線径 0.005mm の T 型熱電対を使用した。

Fig. 25 で示したタイミングチャートと同様のタイミングでペルチェ素子の運転と、データ取得を行った。電圧条件は C6H4, C6H6 とし、それぞれについてアルミ表面とスライドガラス表面の温度を時系列に取得した。

Fig. 36, Fig. 37 は電圧条件 C6H4 のときの熱電対で計測した温度の時系列変化を示す。それぞれは金属表面、スライドガラス表面について示している。縦破線はペルチェ素子入力の間帯を示す。ペルチェ素子の入力の直後から温度が変化している。入力直後から約 5 秒の間に急速な温度変化をしたあと、緩やかに 5 点の温度が下がっていくことがわかり、冷却ペルチェの影響で全体の温度が減少傾向にあると考えられる。スライドガラス表面に比べて、金属壁表面は大きな温度差がついている。

Fig. 38, Fig. 39 は電圧条件 C6H6 のときの同様の結果である。C6H4 と比較して大きな温度差が生じている。急速な温度変化の後、5 点の温度はほぼ横ばいに推移しており、冷却ペルチェと加熱ペルチェの熱収支のバランスが取れた条件であると考えられる。C6H4 の際と同様、スライドガラス表面に比べて金属壁表面には大きな温度差が生じている。

以上の結果よりこの装置によって T 字合流部付近で温度差をつけた流れ場を形成できると考えられる。また、ペルチェ素子の運転中は定常な温度場が供給されると言える。

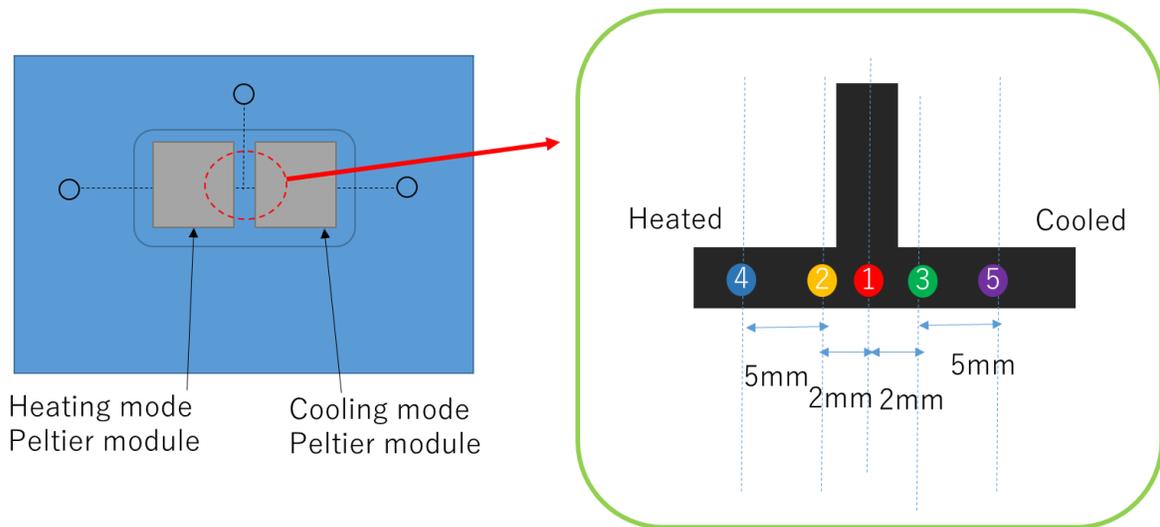


Fig. 34 熱電対によるチャンネル構造温度の水平方向計測位置

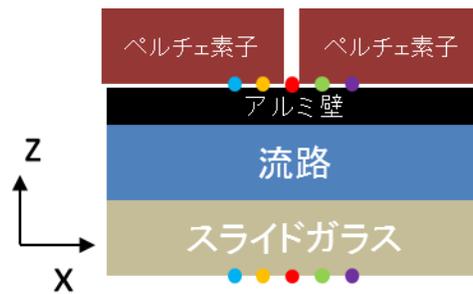


Fig. 35 熱電対によるチャンネル構造温度の垂直方向計測位置

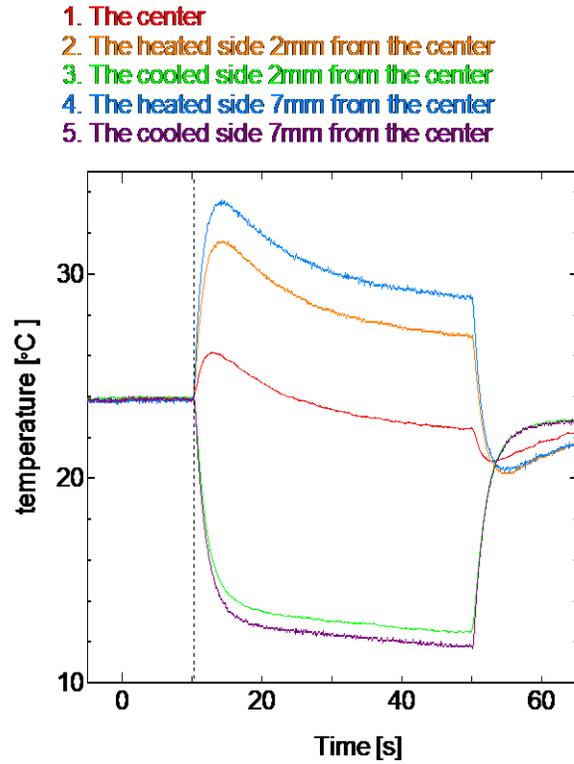


Fig. 36 熱電対計測による，電圧条件 C6H4 の際のアルミ側の温度変化

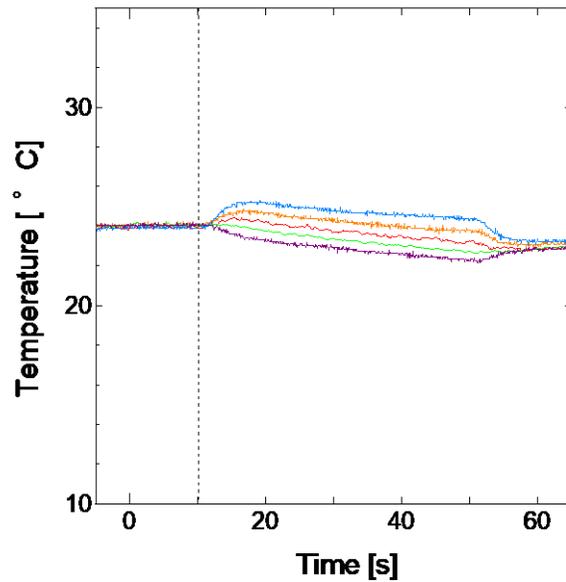


Fig. 37 熱電対計測による，電圧条件 C6H4 の際のスライドガラス側の温度変化

1. The center
2. The heated side 2mm from the center
3. The cooled side 2mm from the center
4. The heated side 7mm from the center
5. The cooled side 7mm from the center

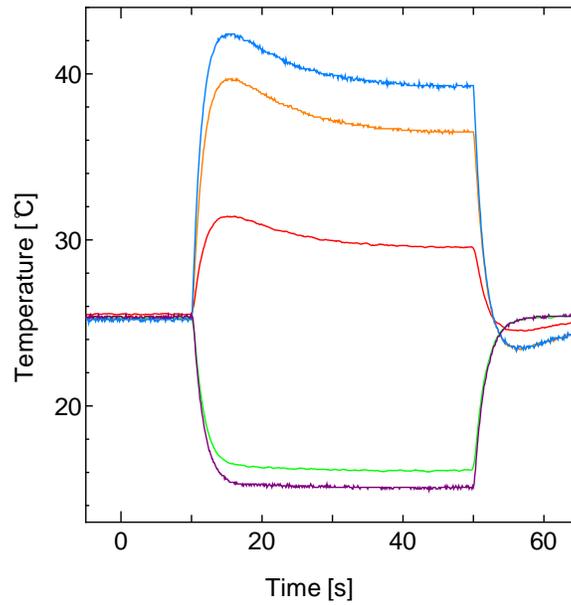


Fig. 38 熱電対計測による，電圧条件 C6H6 の際のアルミ側の温度変化

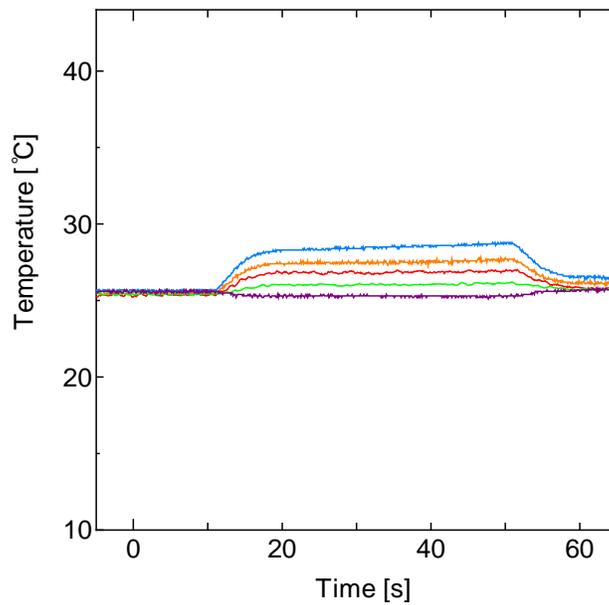


Fig. 39 熱電対計測による，電圧条件 C6H6 の際のスライドガラス側の温度

## 2.7. LIFにより計測した内部温度場

ペルチェ素子により内部の流体に発生する温度場を把握するため、LIFによる計測を行った。この概要について説明する。

まず、5つの断面について、RhodaminBの温度感度を調査した。ヒートシンクの通水温度を変え、ペルチェ素子を運転させずに、定常温度になったときの輝度値を取得した。25°Cのときを基準として輝度比を算出した結果をFig. 62に示す。また、この傾きが感度と定義できるので、各断面について実際の感度の値をまとめた結果をTable 5に示す。断面によってほとんど感度は変化しないことがわかる。この値を用いて、温度場を算出した。

Fig. 41は、20～45秒間の結果を平均した温度分布を示す。5断面で類似した温度分布を示すことがわかる。また、T字合流部では最大で5°C程度以上の温度差が生じていることがわかる。温度分布には円状の模様が発生が確認できる。これは詳しいメカニズムはわかっていないが、水銀灯を集光して観察部位に照射した際に、一様な明るさの分布ではなく、またその明るさが時間・空間的に安定していないために生じるノイズであると考えられる。

水平方向のR値分布を5断面で比較した結果がFig. 42である。断面によって値が1%程度シフトした。水銀灯の明滅や、LDSによる輝度値変化の補正による誤差であると言え、R値は絶対値の比較ではなく、温度勾配の特性を評価するために有効である。温度勾配の形状は各断面で類似した結果となった。線形的な温度分布を示しており、対流熱伝達に比較して熱伝導による熱輸送が支配的な場であると考えられる。断面によって温度差の違いは検出できなかった。一般的にマクロスケールでのLIFは、観察したい位置にシート光を照射し、任意断面の温度分布を計測する。一方で微小スケールではシート光の入射が難しいことから、体積照明を用いる。本研究でも体積照明を用いた。焦点位置を合わせることで、被写界深度の範囲で各断面の温度の取得が可能であると考えていたが、被写界深度外の蛍光の影響も受けたと考えられる。このため、深さ方向に平均的されたデータとなり、各断面の結果が類似しやすくなることに留意が必要である。PIV計測においても、被写界深度外に存在する粒子のピンボケした粒子の輝度値が画像の明るさに寄与するが、PIV計測はパターン認識をするため、焦点外の状況の影響を受けにくい。しかし、LIFは溶解させた染料の輝度分布のみを計測するため、結像しない領域の発光の影響を強く受ける可能

性がある。このため、観察位置による温度場については数値計算と合わせて議論が必要になると言える。計測結果はスライドガラス表面と金属表面の中間の値となり、定性的に正しいLIF計測ができていると考えられる。

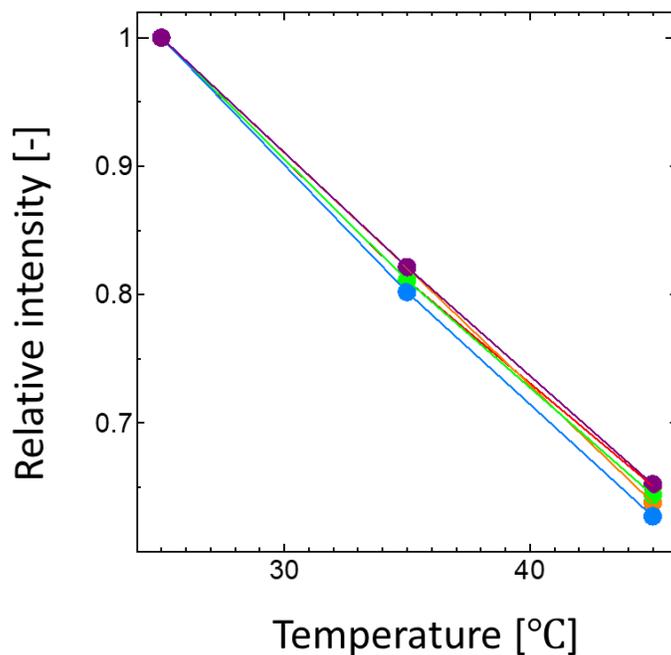


Fig. 40 本研究で用いた RhodaminB の温度感度

Table 5 各断面における温度感度

	%/°C
Plane0	-1.52
Plane1	-1.49
Plane2	-1.53
Plane3	-1.53
Plane4	-1.50

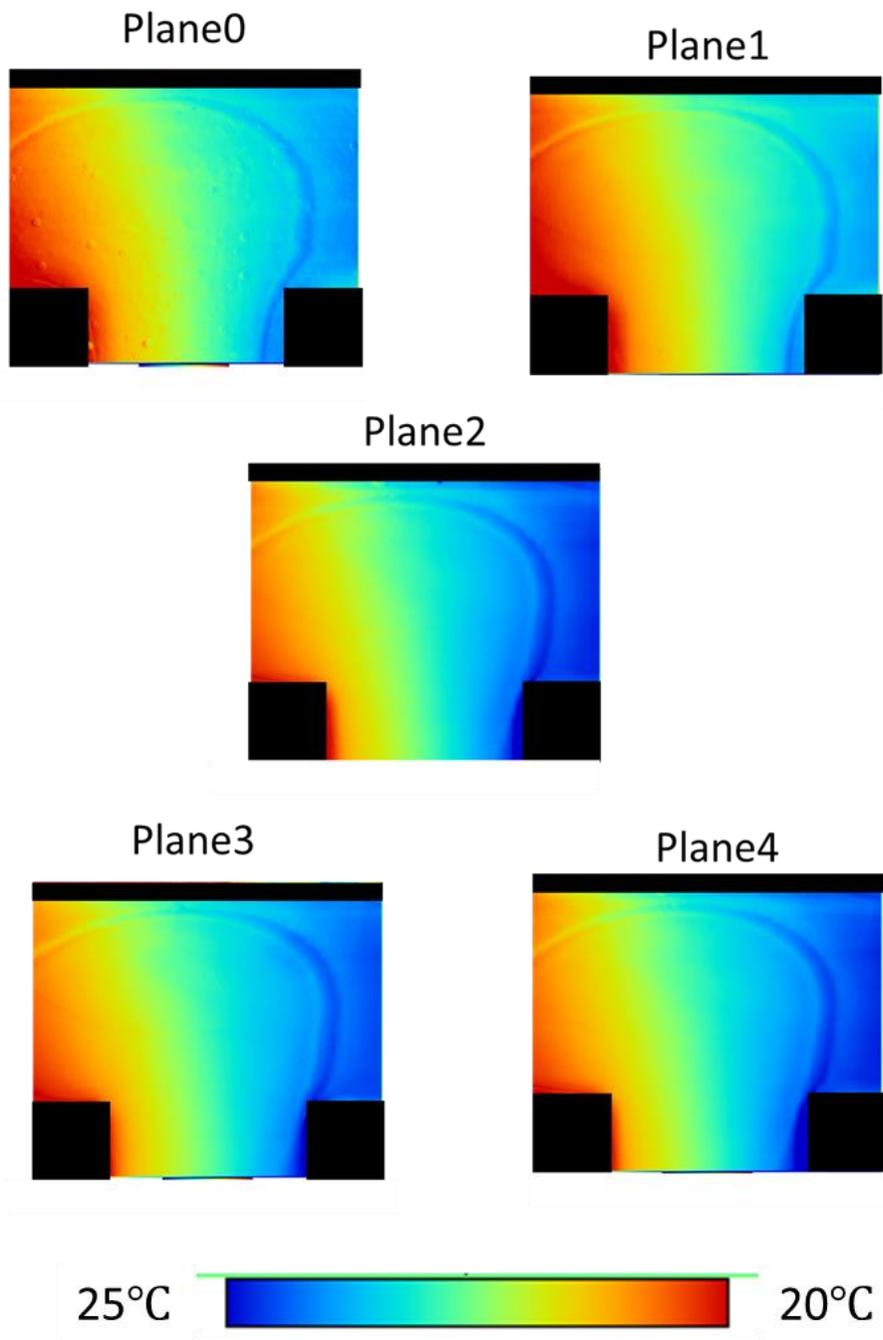


Fig. 41 LIFで計測したペルチェ素子の運転によって内部に生じる温度場

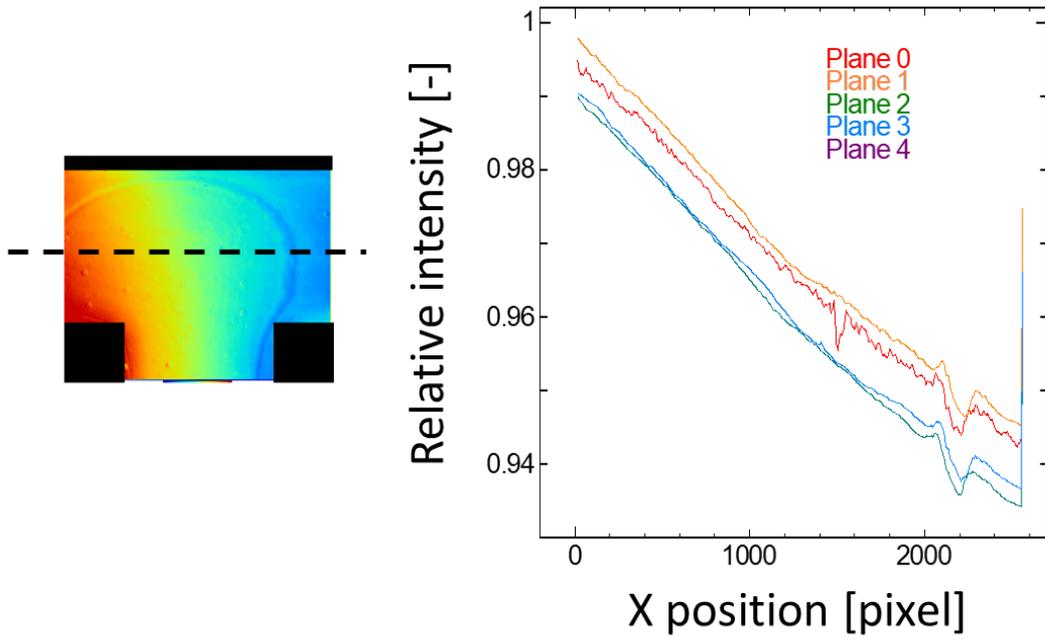


Fig. 42 水平方向の R 値分布の断面比較

### 3. ペルチェ素子駆動時に発生する定常的な成層

2章で説明した手法により，合流前幅 1mm，合流後幅 1mm，深さ 1mm の基準流路について PIV 計測を行った．ペルチェ素子による流動の変化が見られたため，流動変化の概要を本章で説明する．

#### 3.1. PIV で得られた速度マップ

Fig. 43 に得られた PIV の速度マップの例を示す．カラーコンターは  $x$  方向速度を示す．C6H6 の電圧条件で，計測開始から 20~45 秒間のデータを平均したデータである．計測した 5 断面をそれぞれ示す．なお，ペルチェ素子の加熱側は画像において右側に配置され，冷却側は左側に配置されている．流路の鉛直方向上方である Plane0, Plane1 では，ペルチェ素子を加熱運転している右側の流れが支配的になっていることがわかる．反対に，流路下部の Plane3, Plane4 では，ペルチェ素子を冷却運転している左側の流れが支配的になっている．一方で，流路の中心である Plane2 の流動は左右がバランスした流れになった．

一般的に微小スケールでは密度による成層はほとんど起きないと考えられてきた．ここで，自然対流の影響の強さを代表する無次元数 Ra 数は以下のように表される．

$$Ra = \frac{g\beta\Delta T l^3}{\alpha\nu} \quad (3.1)$$

ここで， $g$  は重力加速度， $\beta$  は体積部長係数， $\alpha$  は熱拡散率， $\nu$  は動粘性係数である．Ra 数が小さい系では自然対流は起こらず，非常に大きい系では乱流となる．重力に対して垂直な 2 枚の板に挟まれた容器を考えたとき，下面を加熱，上面を冷却した場合，対流がおきる遷移点を臨界レイリー数と呼び，1708 という値が理論的に求められている．ただし，重力に対して平行な壁面に温度差を与えた場合はこの限りではなく，より低 Ra 数であっても自然対流が発生する．本研究の深さ 1mm，幅 1mm の流路では Ra 数は  $13.7 \cdot \Delta T$  となった．流路における温度差は流路の温度計測の結果からもわかる通り，数°C程度であるため，Ra 数は非常に小さい，このため，先行研究の例が少ないと考えられる．本研究が着目する，温度による流動変化の特徴と Ra について以降より検討を行う．

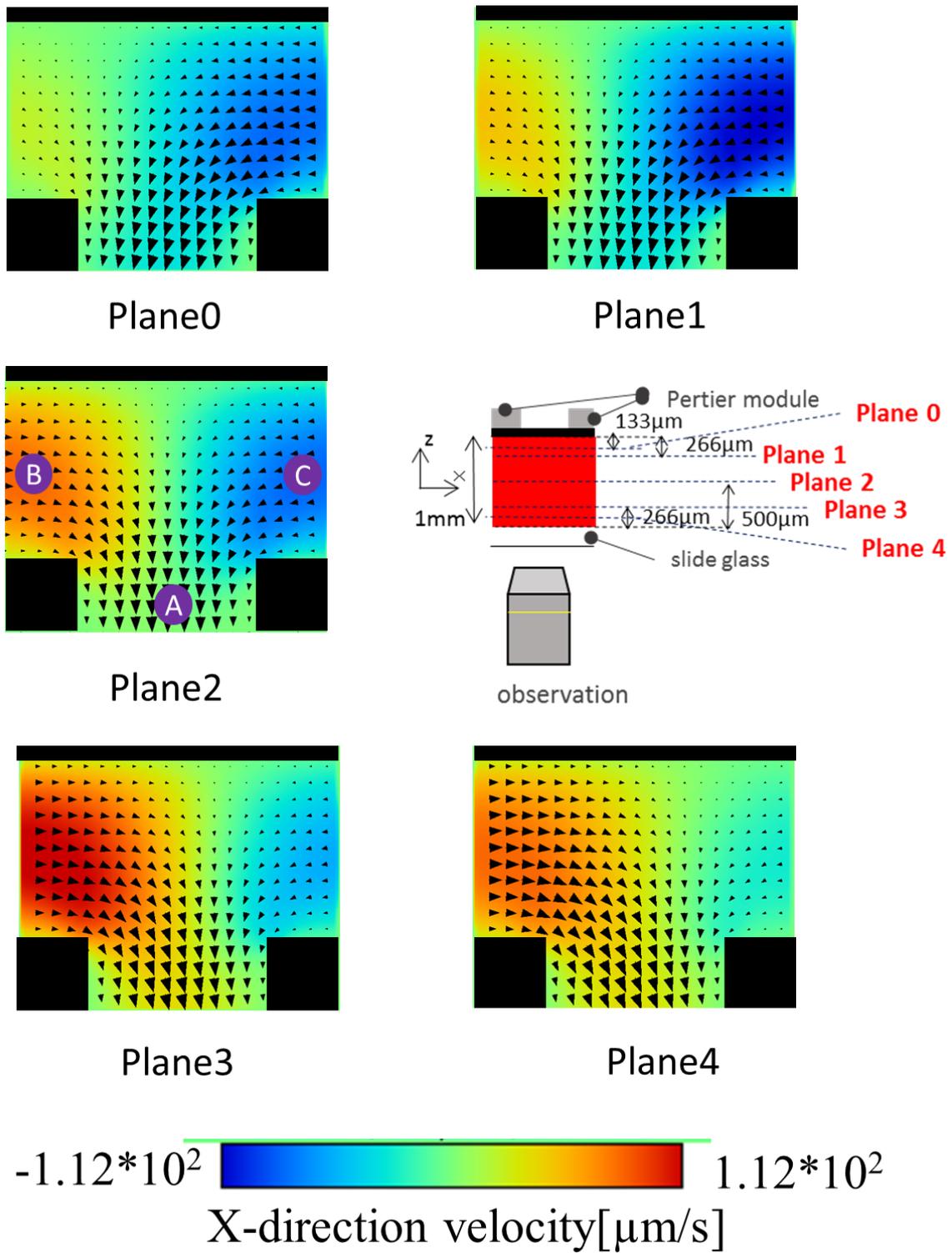


Fig. 43 得られた PIV マップの例

### 3.2. PIV より得られた時系列速度変動データ

Fig. 44 は 5 断面における速度の時系列変動を示したデータである。速度取得点は Fig. 43 の Plane2 の図において、印で示した位置のものである。電圧条件は C6H6 である。

計測開始から 10 秒後にペルチェを印加しているが、全ての点、全ての断面において、ペルチェ素子印加の瞬間に大きく減速する傾向が見られる。反対に、ペルチェ素子への電圧を遮断する 50 秒の時点では、全ての点と全ての断面で加速した。

Plane0,Plane1,Plane3,Plane4 では、電源の入力による急速な速度変化のあと、加熱側と冷却側が速度差を持つ流れが発生することがわかる。急速な速度変化は観察断面によらず、電源入力・遮断の瞬間にパルス的に発生した。また、冷却側・加熱・合流部にかかわらず、入力の際は減速し、遮断の際は加速した。ペルチェ素子が流路中の流体にあたえる物理的影響は、第一に熱が考えられる。しかし、Fig. 38 にも示したように、ペルチェ素子は入力した瞬間に急速な温度変化や極端な温度勾配が起きるわけではない。また、ペルチェ素子が発する熱が流路や作動流体を伝わり到達するまでには伝熱時間を要する。このため、この急速な速度変動が熱によって誘起される場合、断面によって反応時間が変化すると考えられる。パルス的な速度変動は断面の位置に寄らずすべて同一時刻で発生している。

Plane2 では電源印加直後に発生する急速な速度変化の後も、印加前と同様の速度を形成することがわかる。

本 PIV 計測結果の変動係数は 11.2% となった。変動係数とは結果の平均値に対する標準偏差の割合を示した値であり、小さいほど高精度である目安となる。定常流を計測しているにも関わらず、計測値に対して値の誤差が大きい結果となった。これはシリンジポンプの運転による振動が流れに影響を及ぼしていると考えられる。マイクロスケールにおいて、シリンジポンプによる計測は振動が問題視されることがあり、この影響を除く場合は電気浸透ポンプ等を用いる。本研究はサブミリスケールであるため、一般的なマイクロfluidics に比べればスケールが大きいといえるが、振動の影響が大きく見られた。シリンジポンプはステッピングモーターによって運動するため、低ストロークで運転する場合パルス的な特性が出やすくなるといえる。振動の影響を最小限にするため、本研究では容積がなるべく少ない 50 $\mu$ l のシリンジを用い、なるべく長いストロークで作動流体を押し出せるようにした。

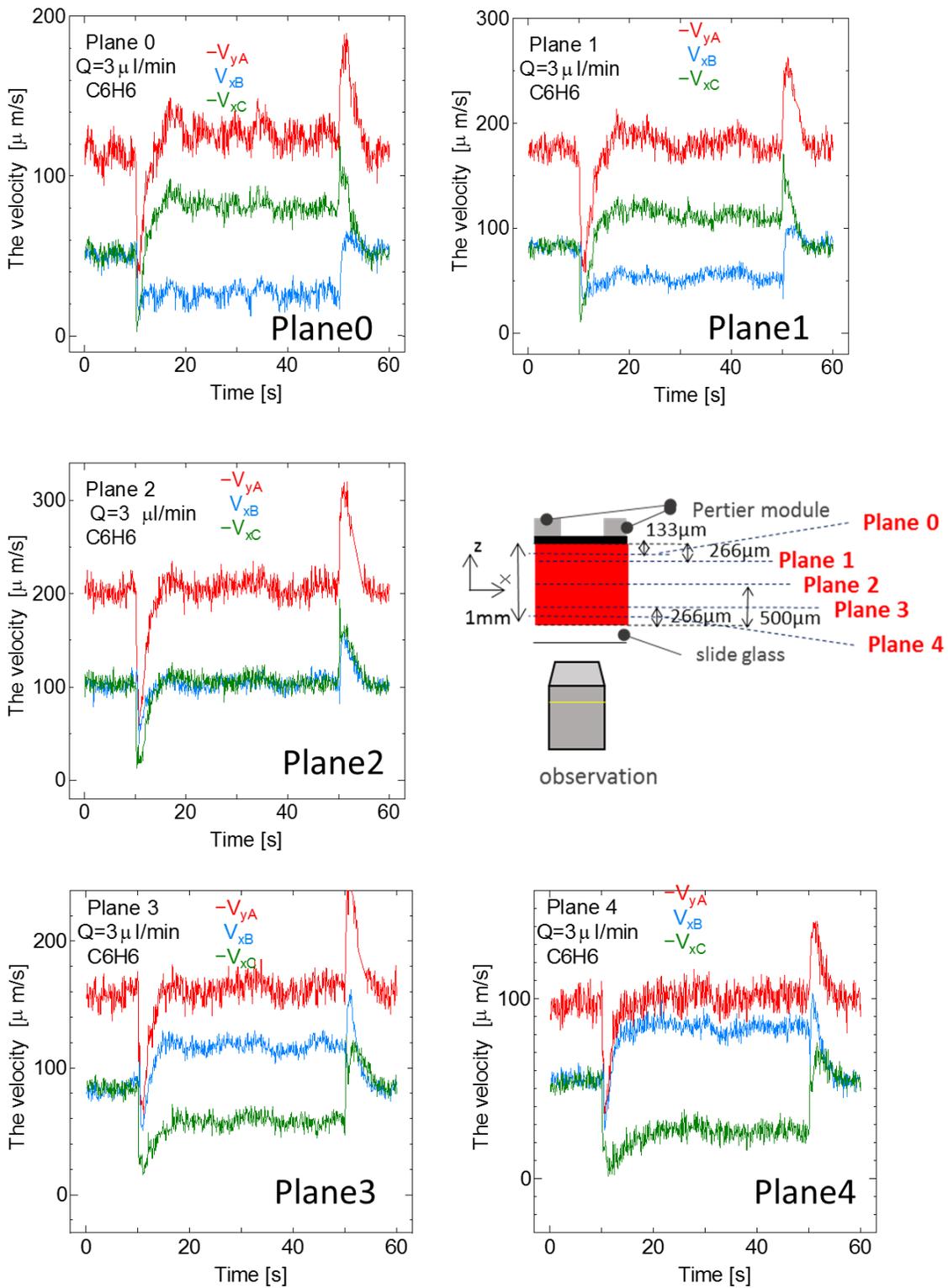


Fig. 44 3点における時系列速度変動

### 3.3. 下流部で発生する流れ場

3.1で説明したように、合流部で成層が発生したことから、下流部の流れの概要を調査した。

冷却側の作動流体を水とし、加熱側の作動流体に PIV 粒子を懸濁させた水として、下流部の混合の様子を撮影した。PIV 懸濁粒子を用いた理由は、分子拡散による混合の影響を排除した、対流による混合の様子を観察するためである。また、粒子を用いると焦点面にいる粒子は結像し、焦点外にいる粒子はピンボケするため、現象を視認しやすくなるメリットがあると考えた。

Fig. 45 は Plane3 に焦点を合わせた際の下流部の様子を撮影したものである。対物レンズの倍率は 10 倍にした。観察領域は左上にオレンジ色の斜線で示した。ペルチェ素子の入力瞬間である計測開始 10 秒から 5 秒間隔の映像を示す。流入流速  $50\mu\text{m/s}$ 、電圧条件 C6H6 について説明する。10s の時点では流路中心を境にして左右にはっきりと明暗がついており、左右の流れが均等に流入していることがわかる。ペルチェ素子の入力後、明るい部分が右側、すなわち加熱側に流れる様子が視認できる。PIV 算出結果において、Plane3 では流れの合流部が加熱側に移動することがわかった。実際に流路下流においても加熱側に粒子が流れる様子が確認できたといえる。20~30s の映像に注目すると、右側に明るい粒子が流れていくと同時に、薄暗いエリアが左側に広がる様子が視認できる。薄暗いエリアはピンボケした粒子が存在している箇所である。すなわち、Plane3 より上部に存在する粒子が左側に流れていることを意味するといえる。35~50s の映像では、薄暗いエリアの左下部が徐々に明るくなった。これは粒子が Plane3 で結像したことを示している。すなわち、当初流路の右側に存在した粒子が、左側、鉛直方向下部に移動したと考えられる。旋回流が発生したといえる。

同じ電圧で流速を  $25\mu\text{m/s}$  にした映像を中段に示す。流速が遅いことで、より旋回が短い距離で進行する様子がわかる。

流速  $25\mu\text{m/s}$ 、電圧条件 C8H8 での旋回の様子を図の下段に示す。C6H6 と比較して強い旋回流が発生することがわかる。すなわち、旋回の強度は入力した電力に相関があるといえる。また、2 mm という短い距離の間に右側にいた粒子群が 1~2 回転している様子がわかる。このため 2 液の界面積は普通の層流と比較して非常に大きくなると考えられる。以上の結果から、温度場によって旋回流が発生することがわかった。

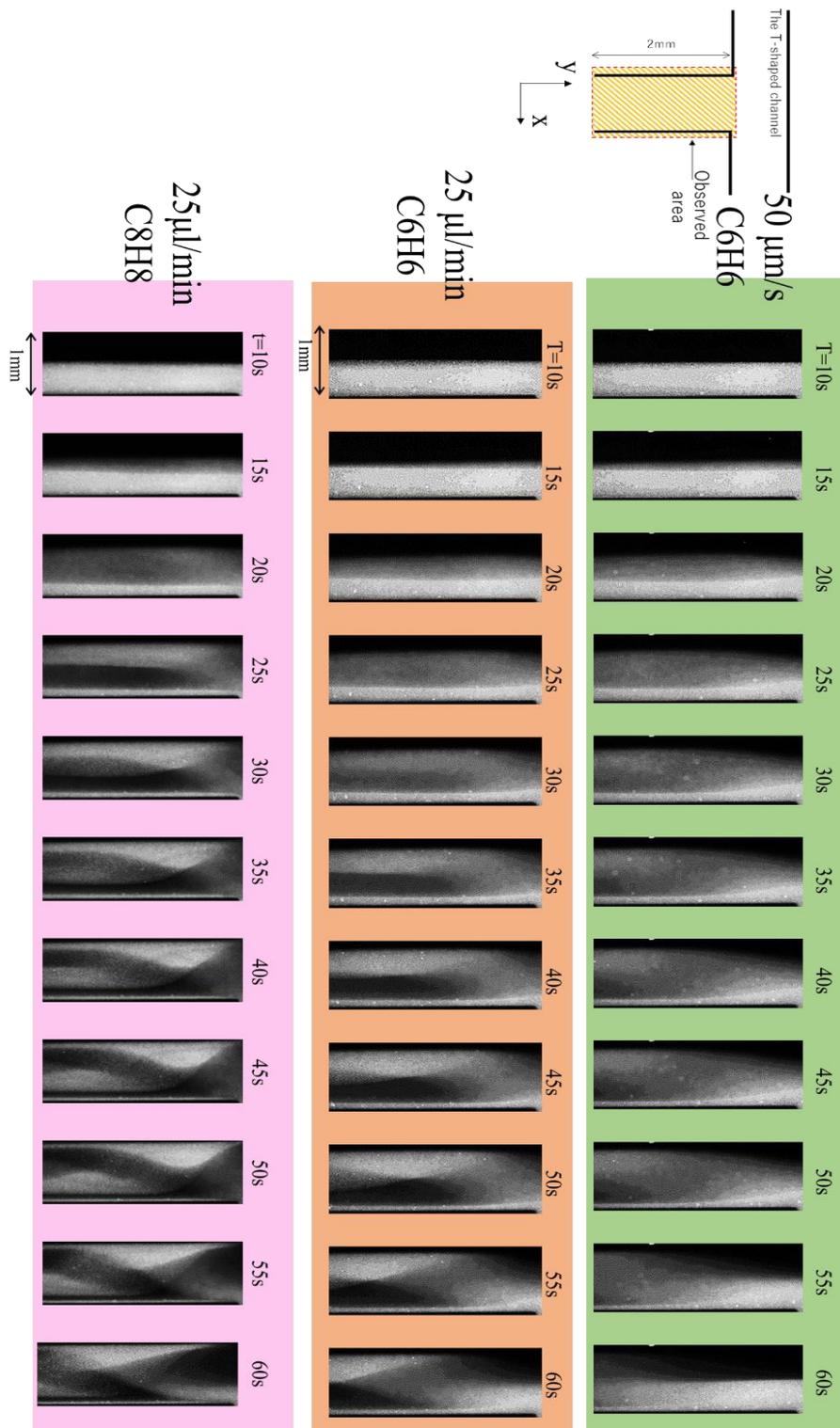


Fig. 45 ベルチェ素子の運転中の流路下流部に発生する流れの様子

### 3.4. 本研究の構成

以上の結果より，①ペルチェ素子の入力時間中には定常的に成層が発生し，下流部で旋回流が発生すること，②ペルチェ素子の入力の瞬間に急速な速度変動が起きることがわかった．これらの現象は報告例がなく，微小流体の非接触制御方法として有効である可能性がある．旋回流は2液の界面積を増大させるため，マイクロミキサーとして有効である可能性がある．Table 6に熱を使ったマイクロ流体制御の利点をまとめた．温度により非接触で微小流体の混合ができれば，後付けや取り外し，修理が可能で，かつ内部の流路をシンプルにできる．このため，小型化が期待できる．また，急速な速度変動は，マイクロソーティング技術に使用できる可能性がある．マイクロソーティング技術は，分岐流路において非常に小さな力によって粒子や細胞を微小な距離動かすことで，任意の流路に目的の粒子を誘導する．非常に微小な力を与えるために様々な大がかりな装置や，流路への加工を必要とする．外側からペルチェ素子を張り付けるだけで擾乱を与えることができれば，ソーティングに必要な新規的な流体制御ツールになる可能性がある．

このため，本論文では①，②の現象についてそれぞれ現象の特性調査を行うことで，それぞれのメカニズムの解明を行う．これに基づいて，マイクロ流体制御技術としての有用性について考察を行う．本章ではまず①の現象について実験結果を報告する．

Table 6 マイクロ流体制御における熱制御の利点

	パッシブ	アクティブ	熱
接触	○	×	◎非接触
可動部	○なし	△場合により	◎可動部無し
加工性	△微細加工	△	◎シンプル構造
システム改変性	×	×	◎事前設計不要
動力	○なし	△高電圧等	○温度制御のみ
コスト	○	×	○
修理・点検	×	×	○修理が容易

### 3.5. 鉛直軸における速度分布

PIVにより得られた速度場から、T字チャンネル合流部における、鉛直軸(Z軸)上での速度分布を調査した。チャンネルの座標との対応を Fig. 46 に示す。Inlet 流路に沿って X 軸を設定し、合流流路の中心を原点にした。Y 軸と Z 軸についても図に示すように設定した。

Fig. 47 は  $Y=0.5\text{mm}$ ,  $X=-0.747, -0.32, 0, 0.32, 0.747\text{mm}$  における、Z 軸上の速度分布を示す。2点鎖線は熱電対の温度データから、対流の影響を無視してペルチェ素子を張り付けたアルミニウム壁からスライドガラス面まで熱が伝わったときの温度分布を1次元非定常熱伝導計算によって計算した結果である。加熱側では上側の速度が速くなり、冷却側では下側の速度が速くなった。また、合流部ではS字の速度分布を形成した。この速度分布が形成されるメカニズムとして、2種類が考えられる。まず、マイクロスケールでは自然対流が発生しにくいと考えられているが、自然対流が発生している可能性がある。また、鉛直方向の温度分布に着目すると、加熱側では上が高温で下が低温である。冷却側では反対に、上が低温で下が高温になる。これにより、粘性抵抗が空間的に変化し、速度分布が変化した可能性もある。先行研究でも粘性を用いて流れ場を制御していた例があるうえ、粘性の温度に対する変化量は密度のそれと比較して大きいことから、粘性の温度依存性が流れ場に影響を及ぼすかどうか検証する必要がある。

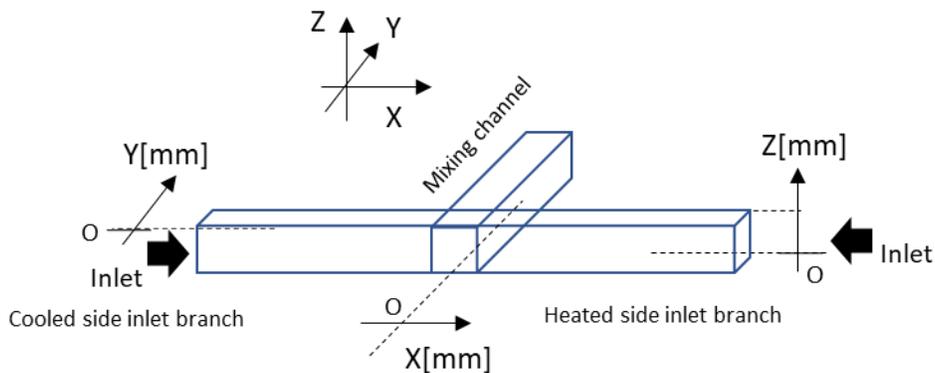


Fig. 46 チャンネルの位置関係

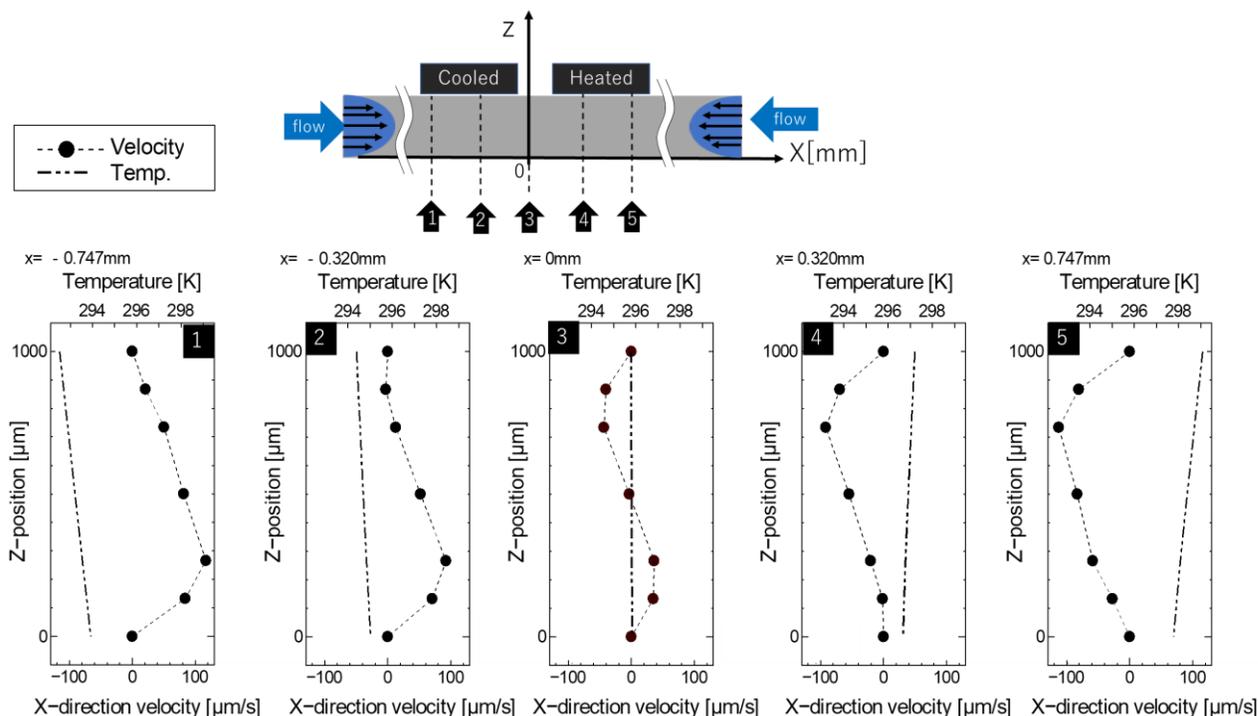


Fig. 47 鉛直軸における速度分布

### 3.6. 入力電力と成層強度の関係

1分間の計測の中で、ペルチェ素子入力時間帯であり、現象が安定している20秒～45秒の間の平均速度を算出し、点Bと点C間における速度差を $v_D$ と定義した。 $v_D$ のイメージをFig. 48に示す。この $v_D$ が成層強度を代表していると考えられるため、各種条件と $v_D$ の関係を調査した。

基準流路における5断面の $v_D$ の値をそれぞれの電圧、流量ごとにまとめた図がFig. 49である。なお、Plane0, Plane1では加熱側が早くなり、Plane3, Plane4では冷却側が早くなるが、ここでは絶対値をプロットしている。電圧が大きいほど $v_D$ の値が大きくなるのがわかる。温度差が大きいほど成層が強くなり、また旋回も強くなると考えられる。また、シリジポンプによる流速は $v_D$ の値に影響を与えないことがわかる。このため、流速が遅いときの方が短距離で旋回が進むと言える。これは2章で示した、粒子による旋回の可視化結果と一致する。また、流路の中心であるPlane2では値がほぼ0に近くなり、左右の速度差が生じなかった。

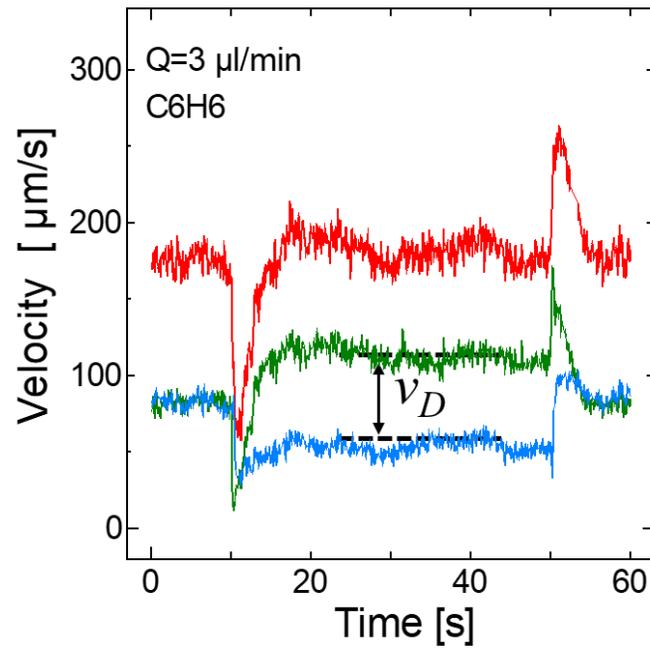


Fig. 48  $v_D$ の定義

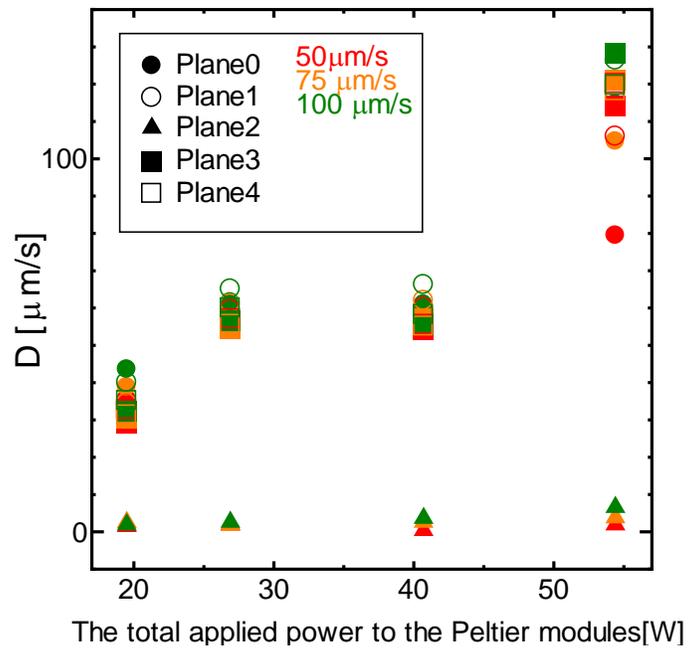


Fig. 49 各電力, 流量における  $v_D$  の値

### 3.7. 流路形状と $v_D$ の関係

各流路形状について、同様に  $v_D$  を調査した。

Fig. 50 は基準流路と同じ深さで、縮流であるが、幅が 0.5mm と細い条件の流路について、印加電圧と  $v_D$  の値の関係を調査し、示した図である。基準流路と比較して傾向がほとんど変化しないことがわかる。流路の幅は成層に影響を与えないと考えられる。

Fig. 51 は基準流路と深さと合流部の幅は同じだが、合流前の幅を 2分の1にし、縮流の影響を受けない流路について、印加電力と  $v_D$  の値の関係を示した図である。ここで、合流前の流速が基準流路の実験条件と同様になるように流量を3パターン設定した。基準流路と縮流無しの流路では  $v_D$  の値と傾向はほとんど変化しないことがわかる。下流の流路形状は合流部の成層に影響を与えないことが確認できた。

Fig. 52 は基準流路に対して、幅は同じだが、深さを 2分の1にした流路について  $v_D$  の値を調べた結果である。他の二つの流路と比較して、明らかに  $v_D$  の値が減少した。電圧依存傾向がみられるものの、ほとんど計測誤差の範囲内であり、流路が浅くなることでほとんど成層が発生しないことがわかる。このことから、この現象はスケールの依存性があり、小さい系では発生しにくくなると考えられる。スケールが小さいと壁面剪断力の影響が強くなり、狭い壁に沿った流れが発生しにくくなると考えられる。

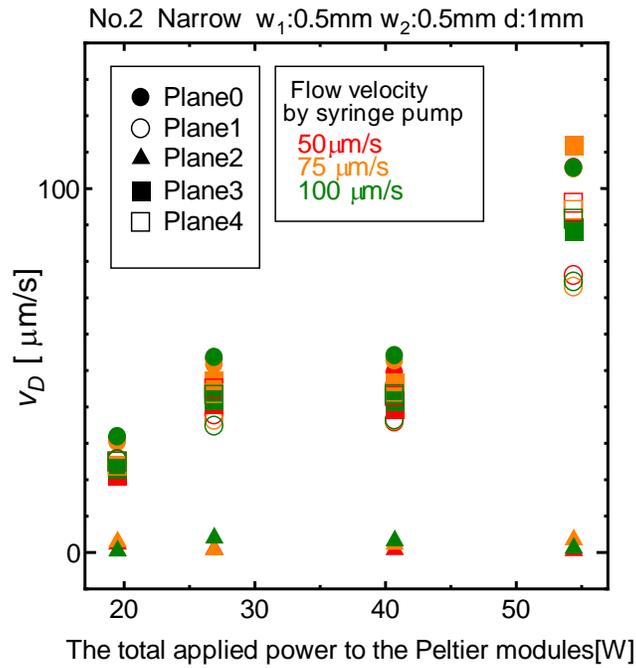


Fig. 50 チャンネル No.2, 細い流路における  $v_D$  の値

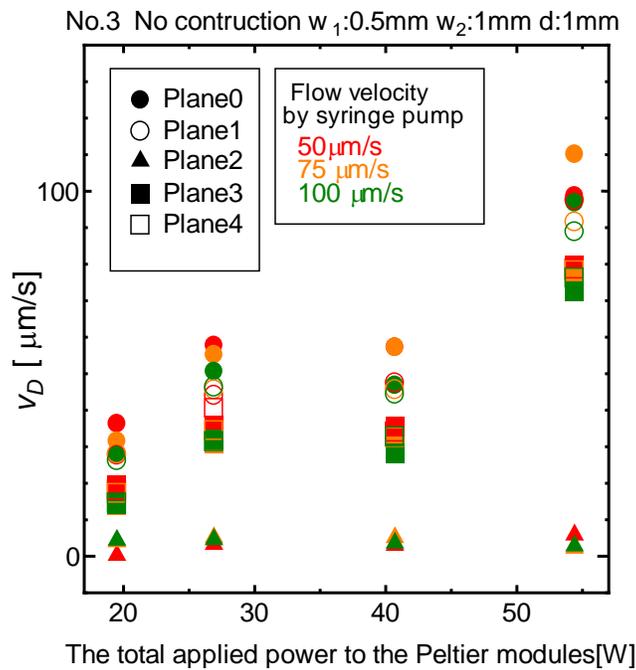


Fig. 51 チャンネル No.3, 縮流なし流路における  $v_D$  の値

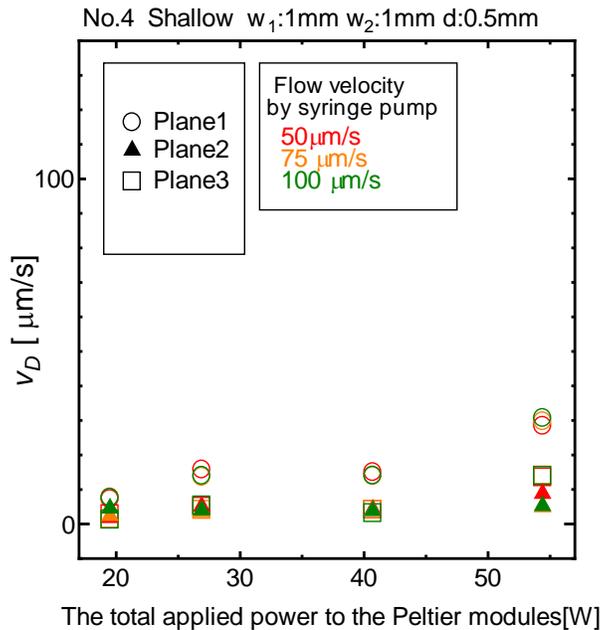


Fig. 52 チャンネル No. 4 浅い流路における  $v_D$  の値

### 3.8. 電圧上昇速度と $v_D$ の関係

これまで、ペルチェ素子によって成層が発生することが分かったが、この現象の安定性について調査するため、電圧上昇速度と  $v_D$  の関係を調べた。本実験において、ペルチェ素子の出力の瞬間に急速な速度変動が発生した。成層がもともと不安定な現象であれば、流れに擾乱を与えられたことで、成層が発生した可能性がある。電圧上昇速度を遅くすることで急速な速度変動の影響を抑え、 $v_D$  の値の変化を取得した。結果を Fig. 53 に示す。横軸は電圧を、電圧上昇にかける時間で割った値である。なお、電圧は線形的に上昇させた。 $v_D$  の値を算出する時間帯は、ペルチェ素子入力時に流れが減速した後、速度が回復しきってから 10 秒後～30 秒後の平均値とした。 $v_D$  の値は電圧上昇速度の影響を受けない結果となった。流れ場に擾乱を加えずとも、温度場によって安定的に発生する現象であることが示唆される。

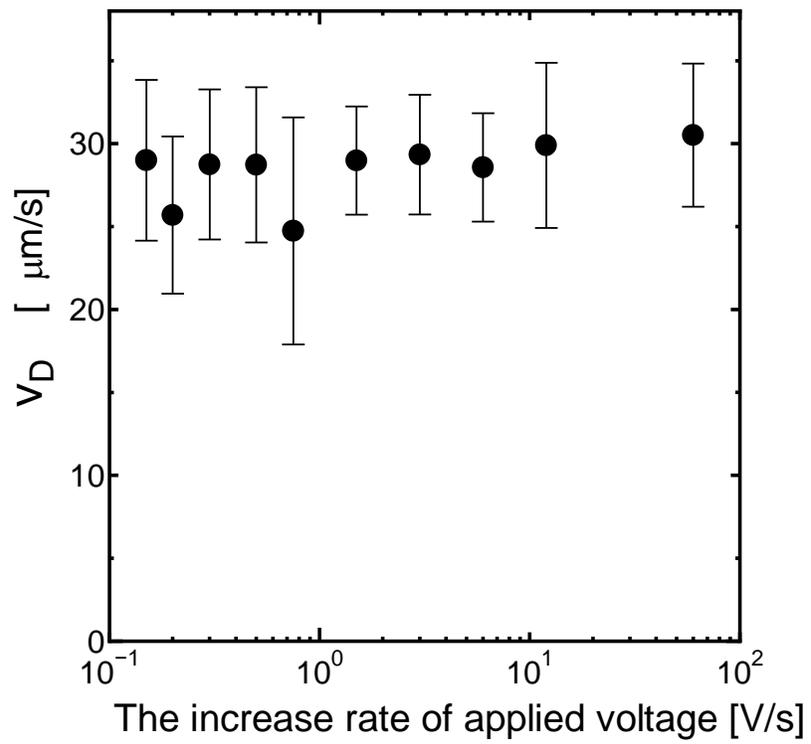


Fig. 53 電圧上昇速度と  $v_D$  の関係

### 3.9. ペルチェ素子による成層の実験結果のまとめ

本章では以下のことが明らかになった。

- ・ペルチェ素子によって生じる温度場により、1mmのマイクロチャンネル内部で流れの成層が発生する。
- ・流路合流部では旋回流が発生する。
- ・温度差が大きいほど成層の強度は強くなった。
- ・成層は流速の影響を受けなかった。
- ・薄いチャンネルでは成層の強度が極端に減少した。このことから、特定のスケールで発生する流れであることがわかった。
- ・擾乱などがなくとも、温度差があれば安定して発生する流れである。

しかし、以上の結果だけでは成層のメカニズムは不明である。マイクロスケールでは粘性の影響が強くなるため、粘性の不均一性が成層を起こす可能性がある。次章では数値計算を用いて、成層のメカニズムを解明し、マイクロミキサーとしての効率や適応範囲について考察する。

## 4. 計算による旋回の特性評価

本章ではまず計算によるメカニズムの解明を行う。そのうち、実験よりも更に多くのパラメータを用いてミキサーとしての特性を調査し、マイクロミキサーとしての適応範囲と有効性について考察する。

### 4.1. 計算方法

計算には商用ソフトの Phoenics (CHAM-Japan)を使用した。基本チャンネルは実験と同様に幅 1mm、深さ 1mm の矩形チャンネルとした。なお、矩形チャンネルの断面の辺の長さを  $L$  と定義し、これをパラメータとして計算を行った。座標系や境界条件等の設定を Fig. 54 に示した。作動流体を水とし、有限体積法による 3次元定常計算を行った。対流項の離散化のアルゴリズムには 1次風上差分と中心差分のハイブリッド法を用いた。十分発達したのちに流れを合流させるため、合流前のチャンネルを 20mm に設定した。流入口の境界条件は速度入口とし、出口は大気圧の自由流出とした。壁面はすべりなし条件とした。チャンネルの材質はアルミニウムとした。温度境界条件を Z 面の upper 面と与えた。実験と同様に、チャンネルの上部壁面には 0.5mm のアルミニウムがある設定にし、この upper 面 ( $Z=L+0.5\text{ mm}$ ) に熱電対によって得られた温度分布を参考に温度境界を設定した。他の面については断熱とした。C6H6 のときのアルミニウム外壁温度を参考にし、温度境界条件として  $4.7^\circ\text{C}/\text{mm}$  を X 軸方向に与えた。温度勾配がある範囲は図に示すように、T 字の中心を挟む  $-2L < X < 2L$  の範囲である。また、 $L\text{ mm}$  あたりに与える温度境界条件による温度差を  $dT$  と定義する。Y 方向に温度差は与えないこととした。温度境界条件を式で表すと以下のようになる。

$$T=15.6^\circ\text{C} \quad (X < -2L\text{ mm}, Z=L+0.5\text{mm}) \quad (4.1.1.)$$

$$T=25+dTX \quad (-2L\text{ mm} < X < 2L\text{mm}, Z=L+0.5\text{mm}) \quad (4.1.2.)$$

$$T=34.4^\circ\text{C} \quad (X > 2L\text{ mm}, Z=L+0.5\text{mm}) \quad (4.1.3.)$$

ここで、温度は  $T$  である。温度境界条件を与える位置について Fig. 55(a)に斜線部で示した。図に示すように、実験と同様にアルミニウムブロック内部にチャンネルを掘削するジオメトリ設定とした。Fig. 55(b)には、温度境界条件を与えた面の温度分布を示す。T 字の合流部に温度差がつくようにし、Y 方向に温度変化はないものを基本条件とした。

メッシュはチャンネルに沿った6面体であり、メッシュ数を2419200とした。Fig. 56に本研究で切ったメッシュの様子を示す。アルミニウム構造についても熱伝導計算を行った。事前に既知の流れ場を計測し、十分なメッシュ数で計算していることを確認した。計算の精度を上げるため、Outletでのメッシュをべき乗則の係数を1.5と設定し、Outletと合流直後についてY方向のメッシュを細かくした。X方向については、合流部直前でより精度の高い計算ができるよう、べき乗則の係数を1.5としメッシュを細かくした。流路内部は、流路幅、深さのL[mm]に対しそれぞれ40分割とし、メッシュの疎密度は空間的に変化させずに計算を行った。

成層に与える密度と粘度の影響を調査するため、水の粘度・密度と温度の関係を3次関数で近似し、計算に考慮することとした。まず、粘度の温度による変化を考慮に入れず、密度のみが温度変化するとき、以下のように条件を設定した。

$$\rho(T) = 1.391 \times 10^{-8}T^3 - 5.562 \times 10^{-6}T^2 - 4.944 \times 10^{-7}T + 1.000278 \quad [10^3\text{kg/m}^3] \quad (0 \leq T \leq 100) \quad (4.2.1)$$

$$v = 8.97 \times 10^{-6} \quad [\text{m}^2/\text{s}] \quad (4.2.2)$$

$$\mu = 8.97 \times 10^{-4} \quad [\text{Pa} \cdot \text{s}] \quad (4.2.3)$$

$\rho$  は密度、 $v$  は動粘性係数、 $\mu$  は粘度である。本来これらの関係には以下の式が成立する。

$$v = \mu/\rho \quad (4.3)$$

このため、 $\rho$  が温度の関数である場合、自動的に粘度や動粘性係数も温度の関数となる。本研究では密度と粘性の影響が流れに与える影響を調査するため、 $v$  と  $\mu$  を定数として計算を行った。すなわちこの条件で計算する場合、実際の流体とは挙動が異なることに留意されたい。

次に、粘度の温度による影響のみを考慮にいれ、密度は変化しない条件で計算を行う場合、以下のように設定を行った。

$$v(T) = -2.584 \times 10^{-12}T^3 + 5.691 \times 10^{-10}T^2 - 4.589 \times 10^{-8}T + 0.000001732 \quad [\text{m}^2/\text{s}]$$

$$(0 \leq T \leq 100) \quad (4.4.1.)$$

$$\mu(T) = -2.584 \times 10^{-9}T^3 + 5.691 \times 10^{-7}T^2 - 4.589 \times 10^{-5}T + 0.001732 \quad [\text{Pa} \cdot \text{s}]$$

$$(0 \leq T \leq 100) \quad (4.4.2.)$$

$$\rho = 1 \quad [10^3\text{kg}/\text{m}^3] \quad (4.4.3.)$$

実際の流体と同じ物理条件であると考えられる、粘性と密度がどちらも温度に依存する条件は、以下のように設定を行った。

$$\rho(T) = 1.391 \times 10^{-8}T^3 - 5.562 \times 10^{-6}T^2 - 4.944 \times 10^{-7}T + 1.000278 \quad [10^3\text{kg}/\text{m}^3]$$

$$(0 \leq T \leq 100) \quad (4.5.1.)$$

$$v(T) = -2.584 \times 10^{-12}T^3 + 5.691 \times 10^{-10}T^2 - 4.589 \times 10^{-8}T + 0.000001732 \quad [\text{m}^2/\text{s}]$$

$$(0 \leq T \leq 100) \quad (4.5.2.)$$

$$\mu(T) = v(T)\rho(T) [\text{Pa} \cdot \text{s}] \quad (4.5.3.)$$

マイクロミキサーとしての特性を評価するため、 $dT$ を変化させ、旋回強度を調査した。また、流入流速を 50 から 300  $\mu\text{m}/\text{s}$  と変化させ旋回強度への影響を調査した。 $v(T)$ に係数  $k$  を乗し、粘度の大きさが旋回強度へ与えるの影響を調査した。また、流路断面の一片の長さ、 $L$  を 0.25~20mm に変化させ、スケールと旋回強度への影響を調査した。

マイクロミキサーとしての効率を調査するため、細胞を模擬した  $5\mu\text{m}$  の粒子を懸濁させた水を片側の流入口から入れ、もう一方からは水のみを流す設定にし、混合を計算した。このときの粒子の拡散係数は Stokes-Einstein の式より  $4.87 \times 10^{-11} [\text{m}^2/\text{s}]$  と計算された。

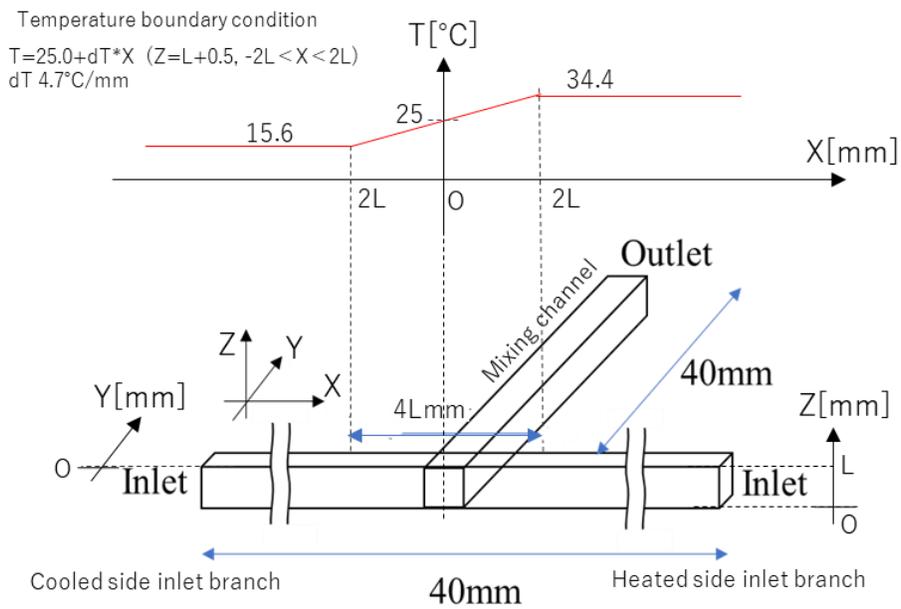


Fig. 54 計算のジオメトリ設定

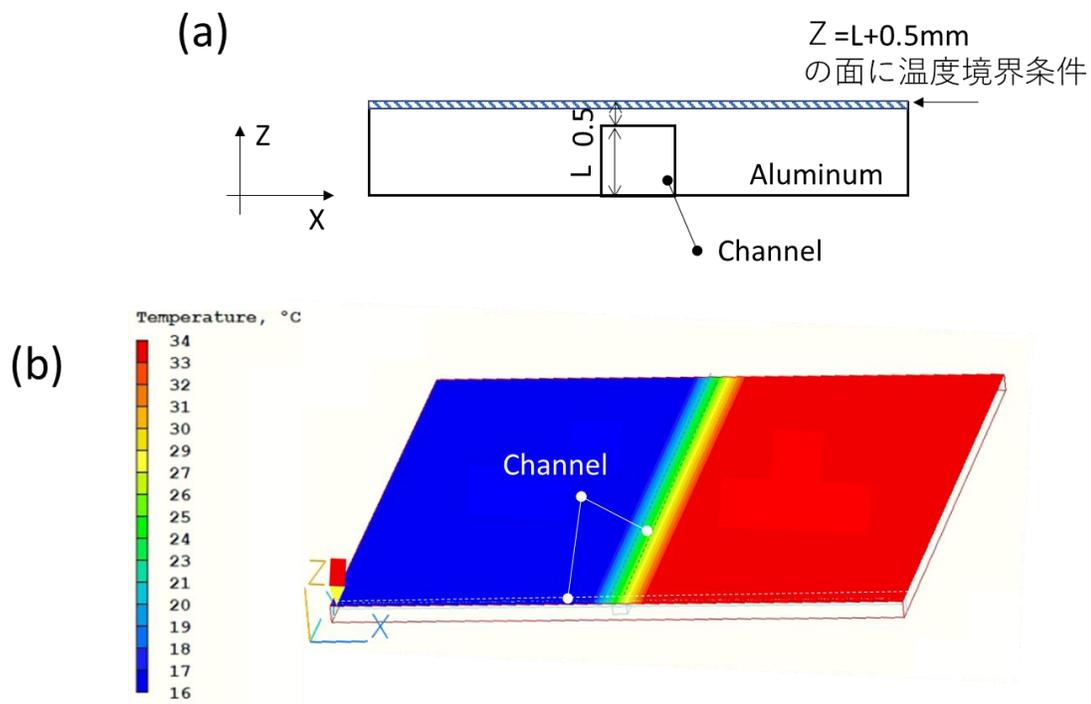


Fig. 55 温度境界条件の与え方 (a) 温度境界条件を与える面と構造物とチャンネルの関係, (b) 温度境界条件の可視化

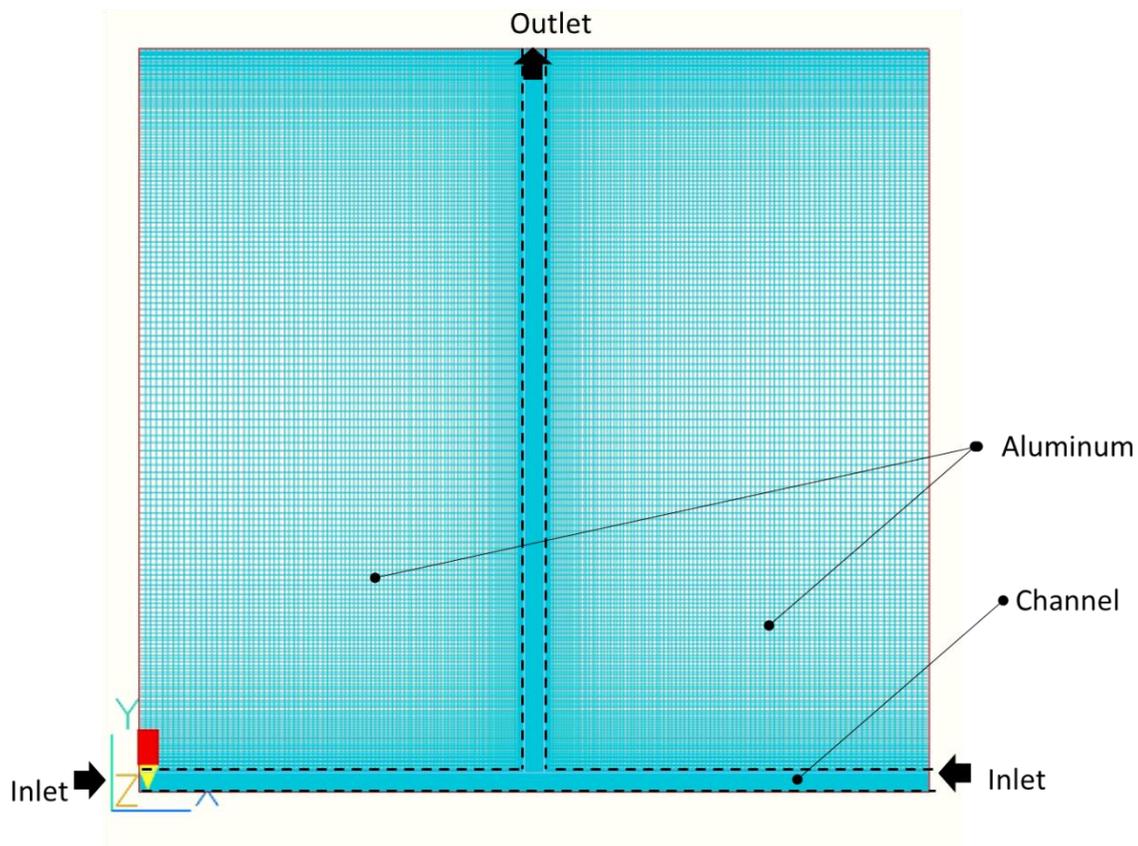


Fig. 56 本研究で切ったメッシュ

#### 4.2. 成層のメカニズム

Fig. 57 は実験と計算により得られた Z 軸における速度分布を示す。L=1mm である。実験結果で説明した際と同様に、Y=0.5mm、X = -0.747, -0.32, 0, 0.32, 0.747 mm の各点についてそれぞれ示した。X=0 mm は流路の中心である。点線とドットは実験値を示す。実線は計算結果を示す。緑線は粘性のみが温度依存する場合、青線は密度のみが温度依存する場合、赤線は粘性と密度がどちらも温度依存する場合についてそれぞれ示す。

一般的にマイクロスケールでは自然対流の影響が小さく、粘性の影響が大きい。また温度に対する密度の変化率に比べて粘度の変化率の方が大きい。このため、鉛直方向の温度差によって粘度が変わり、粘性抵抗が3次的に変化することでこのような速度分布になる可能性を検討していた。粘性のみが温度依存する条件の緑線に注目すると、X=0 の地点

で速度はほぼゼロになり、また、合流前の4点に注目すると、鉛直軸方向の流路の中心である  $Z=500\mu\text{m}$  の周囲で速度は最大となり、粘性の温度依存性のみでは成層が起きないことがわかる。このため、粘性の温度依存性は本研究の成層に寄与していないことが明らかになった。粘性と密度がどちらも温度に依存する赤線に着目すると、実験結果と最も一致する結果となった。密度のみが温度に依存する青線では、より成層が強いことがわかる。以上の結果から、本研究が注目する旋回流は粘性抵抗の空間的な分布ではなく、流体の密度差によって発生している自然対流であることがわかった。マイクロスケールであっても、 $1\text{mm}$  の流路では自然対流が発生する。また、粘性の温度依存性はむしろ旋回を阻害する結果となった。冷却側で粘性が高くなり、この領域の粘度に旋回強度が支配されやすくなると考えられる。すなわち、空間中で粘度が高い領域に旋回強度は支配されると考えられる。

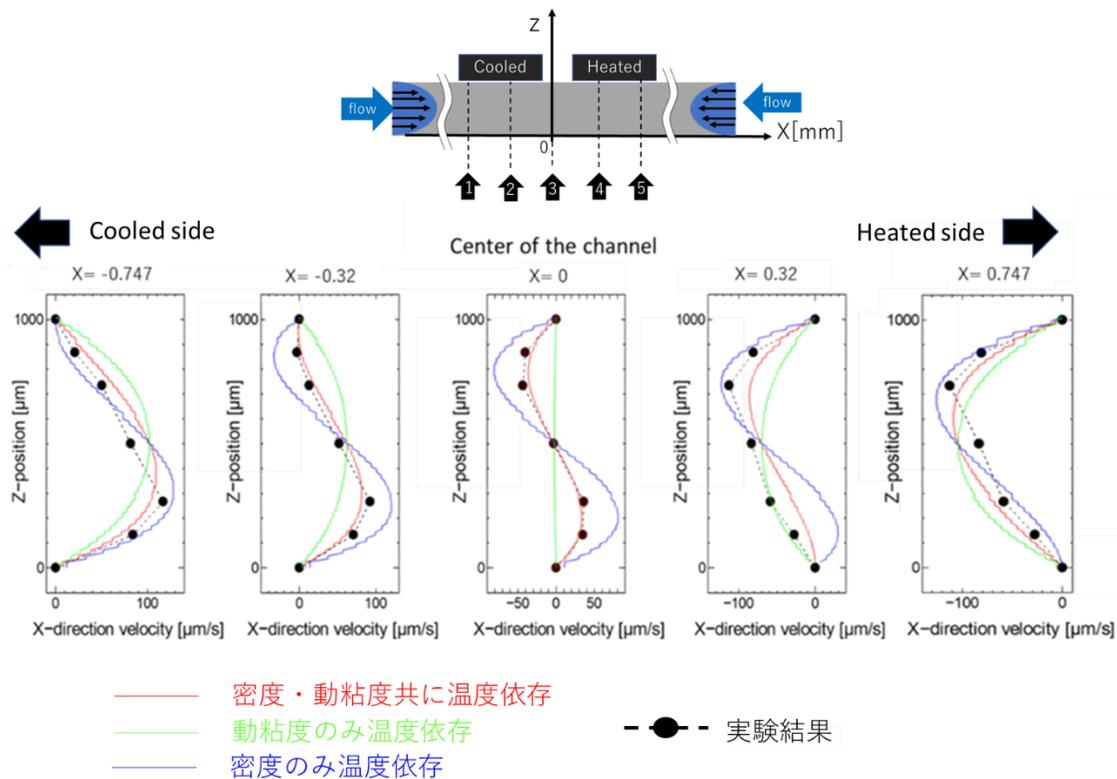


Fig. 57 計算結果と実験の比較

### 4.3. 旋回の評価

動粘性係数と密度がどちらも温度依存する条件で計算した際の、流線の結果を Fig. 58 に示す。Fig. 58(a)は XY 面から流線を見ている。流入時は流路に沿って平行に流れるが、合流部では周期的に交差することがわかる。Fig. 58(b)は XZ 面を観察している。円が描かれており、ここから流れが旋回していることがわかる。実験により示された旋回流を計算によって再現できたと考えられる。

XY 面における、 $Y=10\text{mm}$  における速度分布を Fig. 59(a)に示す。流路の中心部を渦中心とする旋回流が発生することがわかる。この速度分布は合流部において Y 位置によって変化しなかった。これは Y 軸方向に温度変化がないためであると考えられる。Fig. 59(b)は Fig. 59(a)中に点線で示す位置における、それぞれの線を横切る流れの速度を示す。それぞれはほとんど同じ速度になった。均一で対称的な、流路の中心部が 0 となる速度分布を形成することがわかる。これらの速度が旋回成分であると考えられるため、旋回強度を  $I_s$  とし、以下のように定義した。

$$I_s = \overline{|v_x|} \quad (4.4.)$$

すなわち  $I_s$  とは Fig. 59(b)に示す速度の絶対値を平均したものである。種々のパラメータに対する  $I_s$  の値を調査した。

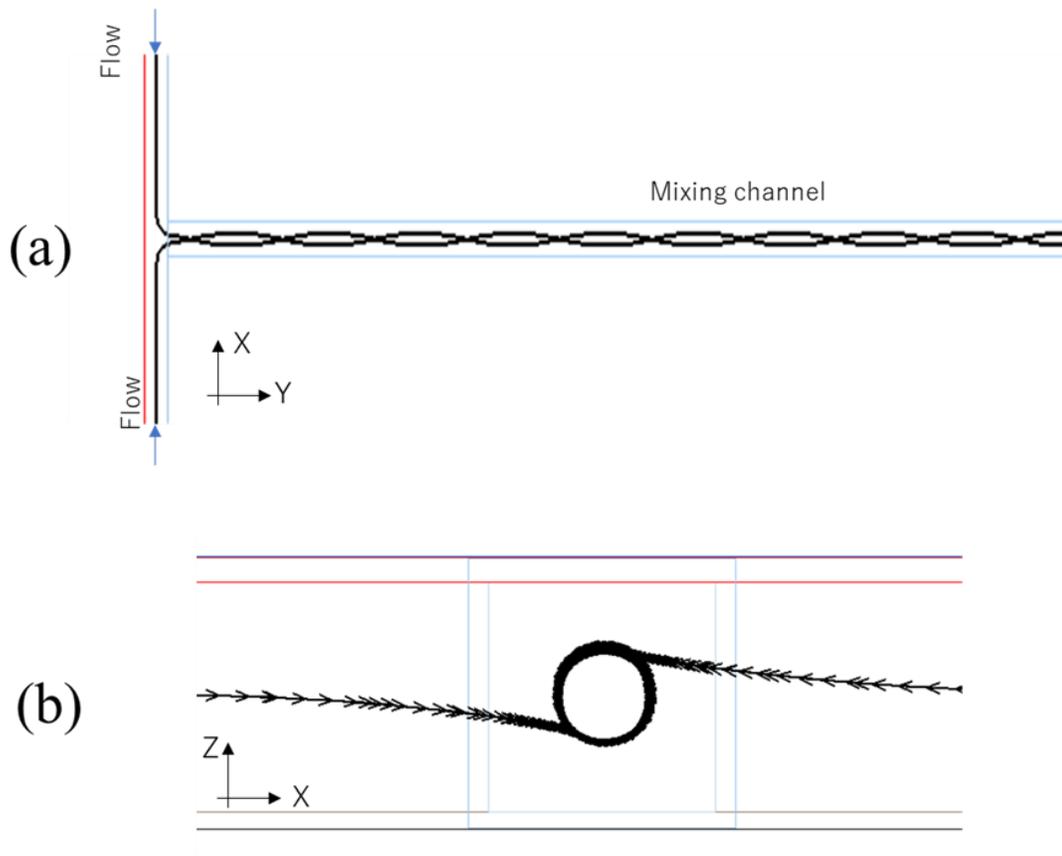


Fig. 58 流線の描く軌跡 (a)XY-Plane, (b)XZ-Plane

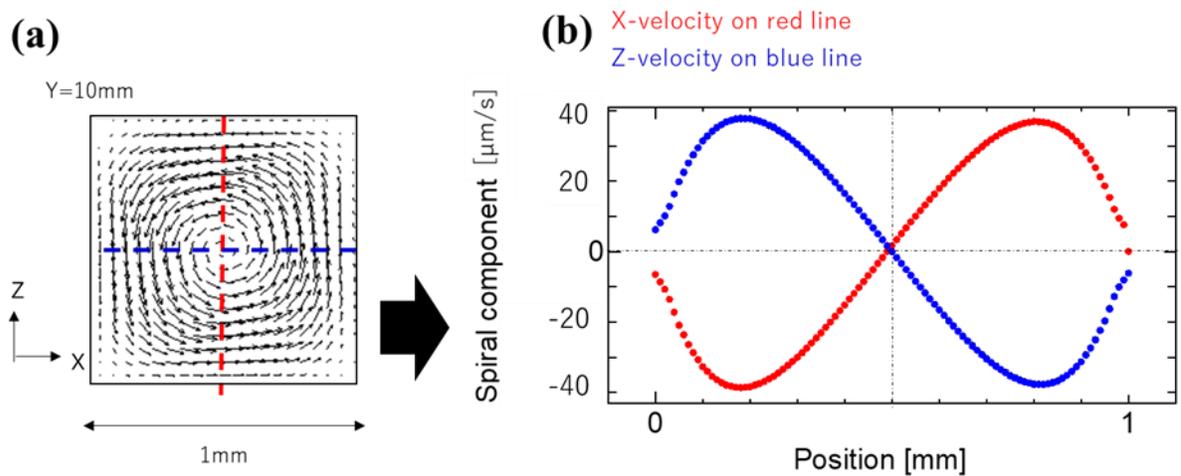


Fig. 59 旋回流による速度分布 (a)XZ面における二次元速度分布, (b)各位置における1次元速度分布

#### 4.4. $I_s$ の温度依存性

Fig. 60 は水平方向の流路内部の温度差と  $I_s$  の関係を示す。温度差の計測位置のイメージを図の左に示す。ここで、温度差とは、内部に発生するこの位置での温度差であり、 $dT$  とは別の指標であることに注意されたい。Y=200mm の位置について  $I_s$  を計算した。ただし、合流後についてはどの位置についてもほとんど同じ温度と速度分布を示した。流路の大きさは 1mm であり、Z=0.5mm の流路中心部について算出した。流入流速は  $50 \mu\text{m/s}$  である。図より、旋回強度  $I_s$  は温度に比例することがわかる。これは水の密度が凝固点と沸点の範囲内において温度に対して減少する範囲であるためと考えられる。ただし、1mm の範囲に  $100^\circ\text{C}$  の温度差をつけることは現実には難しいと考えられる。C6H6 の実験条件で内部に発生する温度差は  $10^\circ\text{C}$  程度であったため、ペルチェ素子を用いて加熱冷却をする場合はこの前後の温度差を用いることになると思われる。

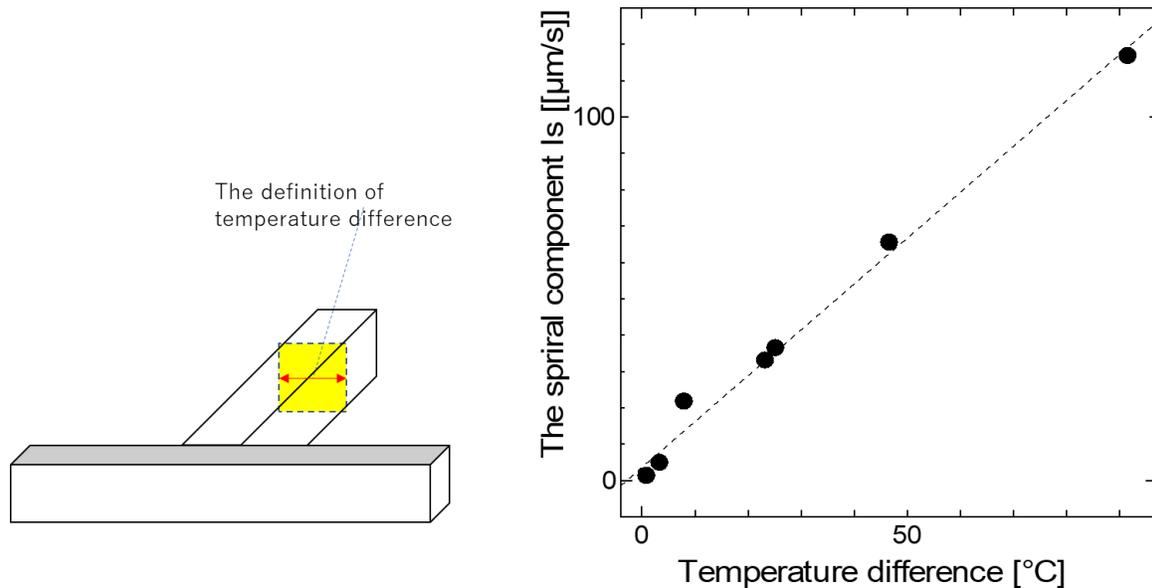


Fig. 60  $I_s$  と温度差の関係

#### 4.5. $I_s$ の粘度依存性

Fig. 61 に、 $v(T)$  にかけた係数と  $I_s$  の関係を示す。チャンネルの断面の大きさは 1mm である。流入流速は  $50\mu\text{m/s}$  である。係数  $k$  と  $I_s$  は反比例の関係にあることがわかる。このことから、この現象をマイクロミキサーに使用する場合、粘度に比例して混合距離が必要になると言える。

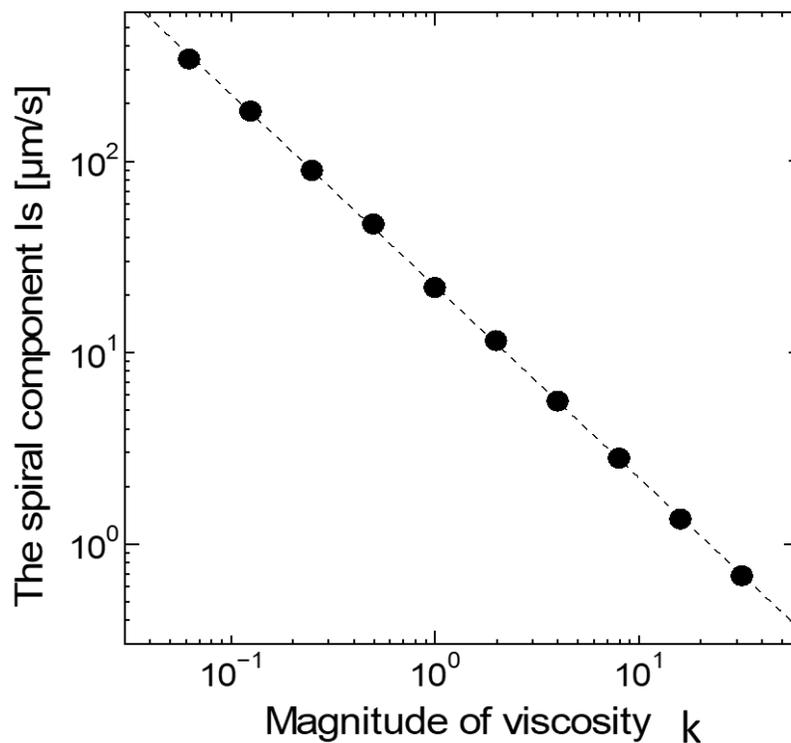


Fig. 61 動粘度に乗した係数  $k$  と  $I_s$  の関係

#### 4.6. $I_s$ の流入流速依存性

Fig. 62 は、流入流速を様々に変化させた際の  $I_s$  の大きさを示したグラフである。流路断面の大きさは 1mm である。 $I_s$  は流入流速に依存しないことが分かる。このため、主流流速が遅いほど旋回は短時間で進行すると言え、これは実験結果とも一致する。パッシブマイクロミキサーは Re 数が数十以上と大きくなるとカオス混合が誘起されない特性をもつものが存在し、これは圧力損失や漏れなどのリスクがある [52][53]。この旋回流は遅いときほど有効である性質をもち、これはマイクロミキサーの多様性の点で有効であると考えられる。

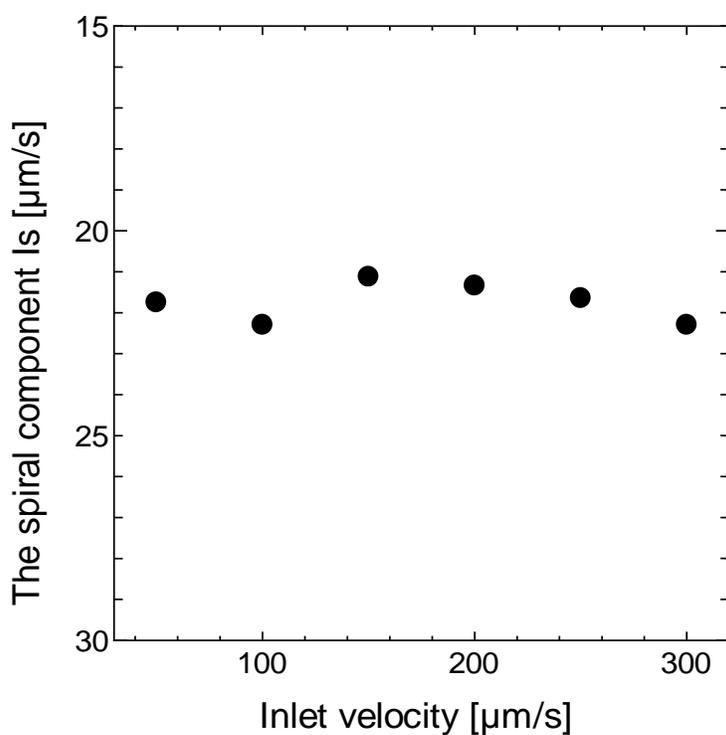


Fig. 62  $I_s$  の流入流速依存性

#### 4.7. $I_s$ のスケール依存性

Fig. 63 は、チャンネルのサイズと  $I_s$  の関係を示している。  $dT$  は  $4.7^\circ\text{C}$  である。 すなわち、  $1\text{mm}$  チャンネルのときは合流部の中心  $4\text{mm}$  の範囲に  $4.7^\circ\text{C}/\text{mm}$  の温度差がついており、  $10\text{mm}$  チャンネルのときは  $0.47^\circ\text{C}/\text{mm}$  の温度差がついている。  $I_s$  はチャンネルの断面長が大きいほど大きくなることがわかる。 自然対流はスケールが大きいときほど影響力が大きくなることがここからもわかる。  $0.25, 0.5\text{mm}$  のチャンネルでは  $I_s$  はそれぞれ  $0.61, 3.078 \mu\text{m}/\text{s}$  と非常に小さい値になった。 このため、この現象をマイクロミキサーとして利用する場合、チャンネルサイズが小さい程旋回を有効に活用できないと考えられる。 自然対流の影響は  $1\text{mm}$  前後から顕在化しはじめると言える。  $4\text{mm}$  までの間は、  $I_s$  は単調に増加し、そのあと増加率は律速になることがわかる。

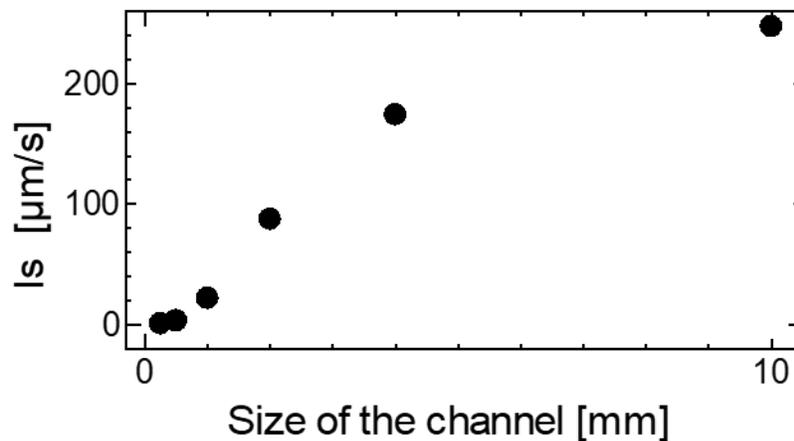


Fig. 63 チャンネルの大きさと  $I_s$  の関係

#### 4.8. $I_s$ の断面形状依存性

流路の断面形状と  $I_s$  の関係を調査した。合流直後の  $Y=0.5\text{mm}$ 、合流後  $200\text{mm}$  のそれぞれについて  $I_s$  と  $Ra$  数を計算した。Table 7 に結果を示す。ここで、代表長さは流路の幅と深さの平均値を用いて  $Ra$  数を計算した。合流直後では、薄い流路と、小さいチャンネルのみ  $I_s$  の値が基準チャンネルに比べて減少した。この結果は実験結果と整合性がある。一方で  $Y=200\text{mm}$  では、細い流路についても薄い流路と近い値をとった。すなわ

ち、十分発達した後の旋回はチャンネルの短い側の壁面剪断力に支配されやすくなるといえる。Ra数にも相関する結果となった。

**Table 7**  $I_s$ の断面形状依存性

	基本	小さい	薄い	細い
断面形状	1mm×1mm	0.5×0.5mm	1×0.5mm	0.5×1mm
合流直後の $I_s$ [μm/s]	21.75	3.08	4.23	27.11
Y=200mm の $I_s$ [μm/s]	20.90	3.00	6.34	6.59
Ra	180.3	21.70	101.0	101.0

#### 4.9. $I_s$ とRa数の関係

以上から得られた結果を用いて、 $I_s$ とRa数の関係についてまとめた結果をFig. 64に示す。 $I_s$ はRaが $10^4$ 以下の範囲でべき関数的な相関があるといえる。また、わずかなRa数から $I_s$ は発生し、 $I_s$ に対する臨界Ra数はないことがわかる。

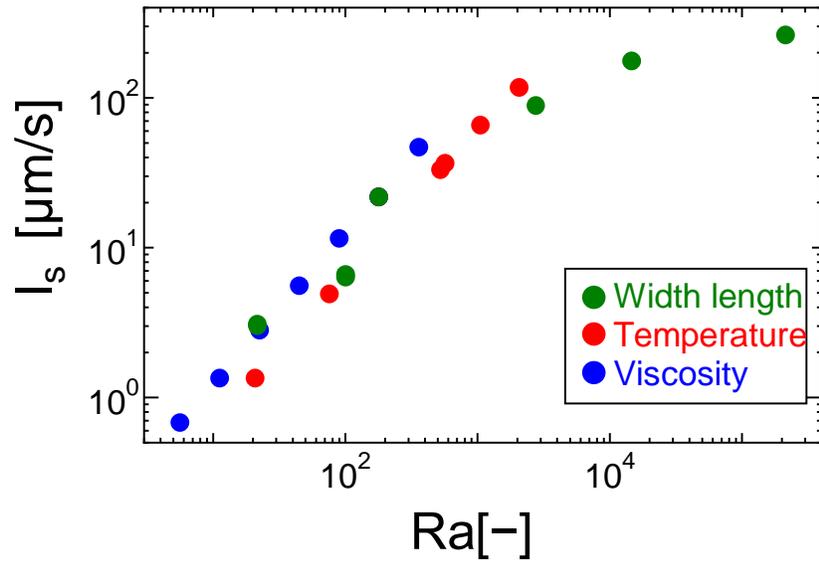


Fig. 64  $I_s$  と Ra 数の関係

#### 4.10. $I_s$ の設置姿勢依存性

旋回は自然対流であることから、設置姿勢の影響を受けると考えられる。これまでは Fig. 65(a)に示すように、Z軸対して負の方向に重力を設定したが、Fig. 65(b)に示すように、Y軸に対して重力を設定した。Table 8に設置姿勢による  $I_s$  の値を示す。計測位置はこれまでと同様 Y=20mm の位置であり、電圧条件は C6H6 である。垂直設置の場合有意に  $I_s$  の値は小さくなった。Fig. 66 は Y=20mm における流路 XZ 断面において、一方の流入流路から細胞を模した物質を流したとき、その質量濃度の分布を示す。水平設置したとき、Fig. 66(a)に示すように、内部の濃度分布は一様であり、混合が進行することがわかる。垂直設置のときの分布は Fig. 66(b)のようになり、混合が進行していないことがわかる。温度差を与えても、内部で旋回流が起きなければ混合は進行しないことがわかる。本現象をマイクロミキサーに用いる場合は設置姿勢に留意する必要がある。

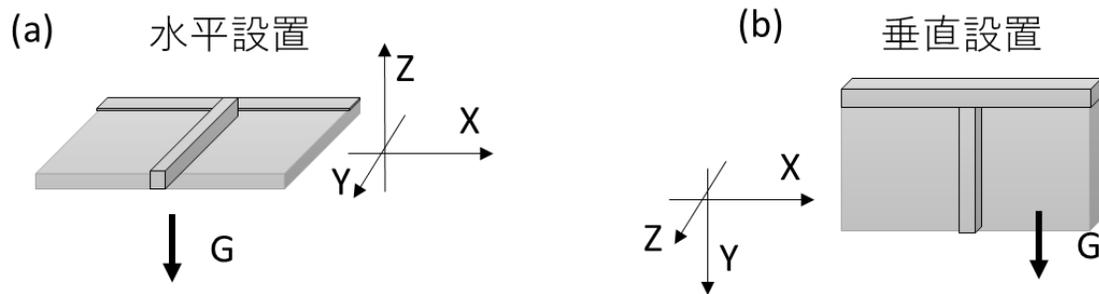


Fig. 65 設置姿勢の設定 (a)水平設置, (b)垂直設置

Table 8 設置姿勢による  $I_s$  の違い (C6H6)

Installation position	$I_s$ [ $\mu\text{m/s}$ ]
Horizontal	21.7
Vertical	$5.71 \times 10^{-5}$

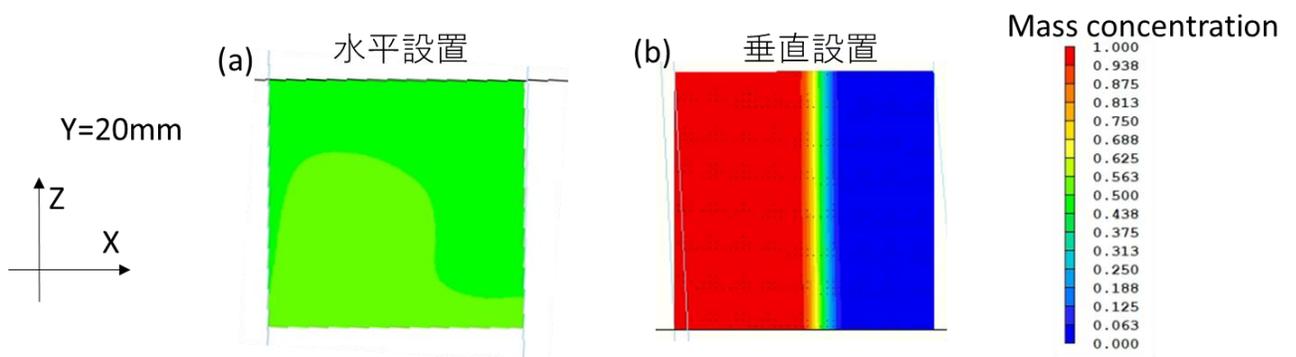


Fig. 66 設置姿勢による Y=20mm 断面での物質質量濃度分布

#### 4.11. $I_s$ の不安定性

マクロスケールでは管路に旋回流が発生した場合、下流部まで旋回の影響が伝播するケースがある。本研究における旋回成分についても、不安定性により下流部に影響を与えている可能性があると考え、検証を行う。これまでは $Z=L+0.5\text{mm}$ の断面すべてに温度境界条件を与えていたが、Fig. 67に示すように、 $0<Y<L$ の範囲のみに温度境界条件を与えることにした。他の面は断熱とした。Fig. 68には、チャンネル内部につく最大温度差と $Y$ 位置の関係を示す。合流部から遠ざかるごとに温度差が低下することがわかる。ここで、それぞれの位置における温度と旋回強度 $I_s$ をプロットした結果がFig. 69である。 $I_s$ は温度差に相関があり、温度差が0になると $I_s$ も0に近づくことがわかる。また、 $I_s$ の値は同じ温度差であっても $Y$ 位置全域に温度境界条件を与えたときよりも低下した。以上より、不安定性や慣性により旋回はほとんどおきず、その場の温度差によってのみ発生する現象であると考えられる。

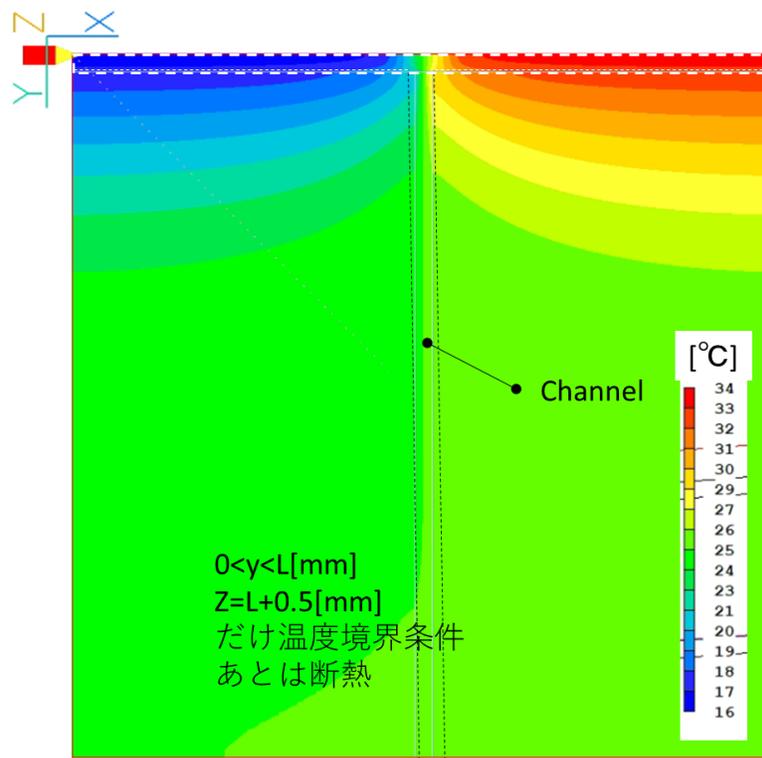


Fig. 67 流れの不安定性を検証するための温度境界条件

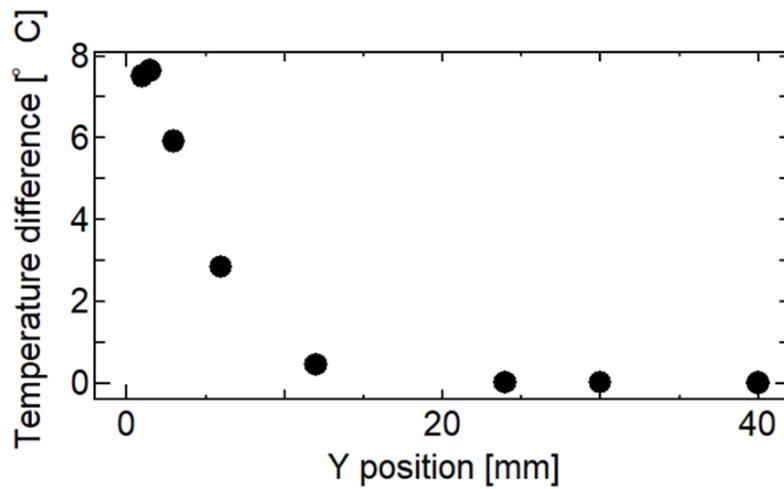


Fig. 68 チャンネル内部につく最大温度差と Y 位置の関係

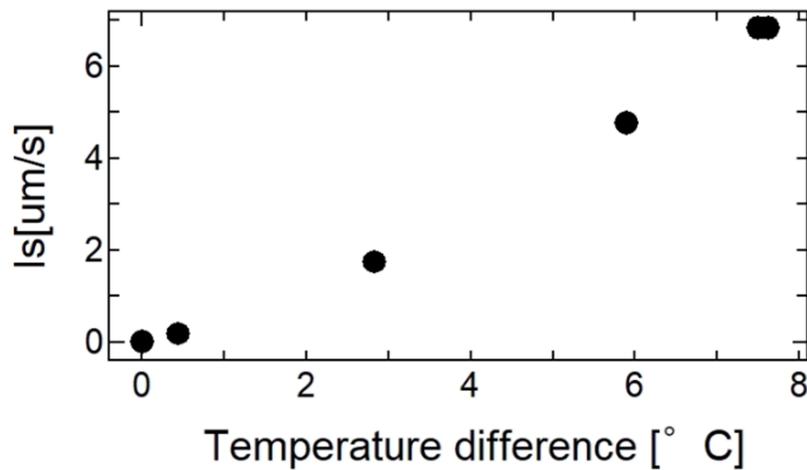


Fig. 69 チャンネル内部温度と旋回強度  $I_s$  の関係

#### 4.12. 内部液の温度分布

Fig. 70 は、 $dT$  は  $4.7^\circ\text{C}$ 、流入流速  $50\mu\text{m/s}$  の条件のときに、内部に発生する 1 次元温度場を 5 断面についてそれぞれ、実験結果と数値計算結果について示したグラフである。実験結果を点線、計算結果を実線で示した。実験結果は流路の近傍である  $0\mu\text{m}$ 、 $1000\mu\text{m}$  の地点で非線形な形状を示した。これは焦点外の壁がピンボケして映り込むことで計測ノイズ

となっているためであり、壁近傍の値は無視してデータを考察することが良いと考えられる。実験結果、計算結果ともに線形的な温度分布を示し、熱伝導の影響が大きい場であると言える。また、実験結果と計算結果ともに傾きは類似しており、LIFにより得られた温度場には整合性があると言える。また、実験はよく制御されて行われており、これにより良く現象を計算によって再現できていると考えられる。一方で、計算結果はペルチェ配置位置に近い断面であるほど温度差が大きくなったのに対し、実験結果はほとんど傾きが変わらないことがわかる。境界条件で与えた温度差は、鉛直方向に進むにつれ熱伝導によって温度差が小さくなっていくと考えられる。これは熱電対により計測したペルチェ配置位置とスライドガラス表面温度からも整合性があると言える。LIFによって断面による結果の違いがでなかった理由は2.7でも説明した通り、焦点外からのシグナルをカットしきれなかったため、平均的な値を計測していると考えられる。焦点位置を合わせることで、被写界深度の範囲で各断面の温度の取得が可能であると考えていたが、被写界深度外の蛍光の影響も受けたと考えられる。このため、深さ方向に平均的されたデータとなり、各断面の結果が類似したと考えている。PIV計測においても、被写界深度外に存在する粒子のピンボケした粒子の輝度値が画像の明るさに寄与するが、PIV計測はパターン認識をするため、焦点外の状況の影響を受けにくい。しかし、LIFは溶解させた染料の輝度分布のみを計測するため、結像しない領域の発光の影響を強く受けてしまったと考えられる。

数値計算結果では、X軸（鉛直）方向に温度変化があるということも示している。このため、粘性抵抗が空間的に変化し、粘性による成層が起きやすい可能性があると考えていたが、この温度特性は本研究の成層や旋回とは無関係であった。

Fig. 71は各チャンネルの大きさによる内部の温度を示す。横軸はXの値を各チャンネルの大きさLで除算することで無次元化した。dT4.7°C,流入流速50 $\mu\text{m/s}$ の条件である。Z=0.5mm,Y=20mmの位置について示した。また、エポキシ樹脂を流路材料とした場合についても計算した。L=1mmのときのエポキシ樹脂とアルミニウムチャンネルの結果に着目すると、エポキシ樹脂の温度差はアルミニウムに比較して2倍以上小さくなった。これは内部の水とアルミニウムの熱伝導率が大きく違うために起きると考えられる。温度差をマイクロミキサーとして使用する場合、大きな温度差を微小なスケールに与えなければならないが、フーリエの法則からも、小さいスケールであるほど大きな温度差を与えること

が困難になる。しかし、熱伝導率の高い流路や部品を使用すれば、より大きな温度差を流路内部につけることが可能であると考えられる。

L=4mm のとき、わずかに温度分布が非線形になった。L=10mm のとき、温度分布は湾曲し、対流熱伝達が支配的な場合の温度分布を形成した。I<sub>s</sub> 対流熱伝達が支配的になるにつれ増加率が律速になったといえる。また、内部の温度分布が線形的であっても、自然対流は発生し、その増加率は大きく、マクロスケールと比較して小さすぎないことがわかる。

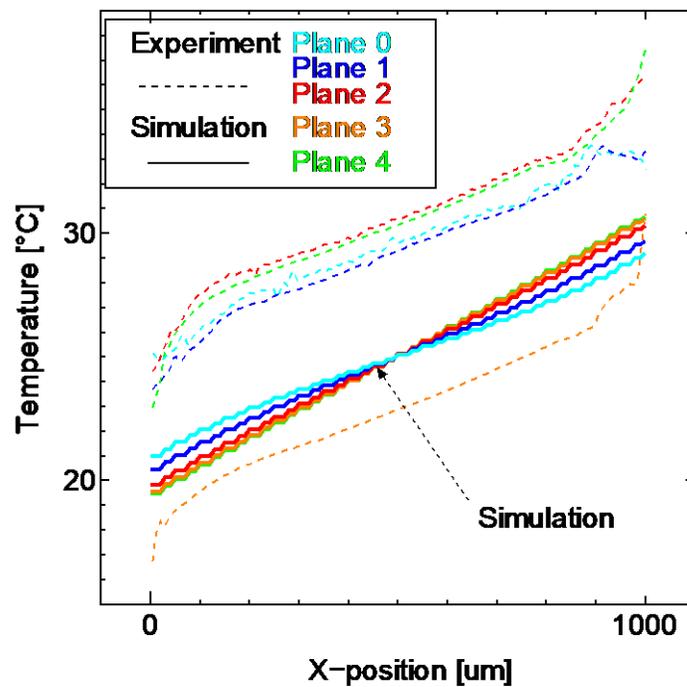


Fig. 70 温度分布の数値計算と実験結果の比較

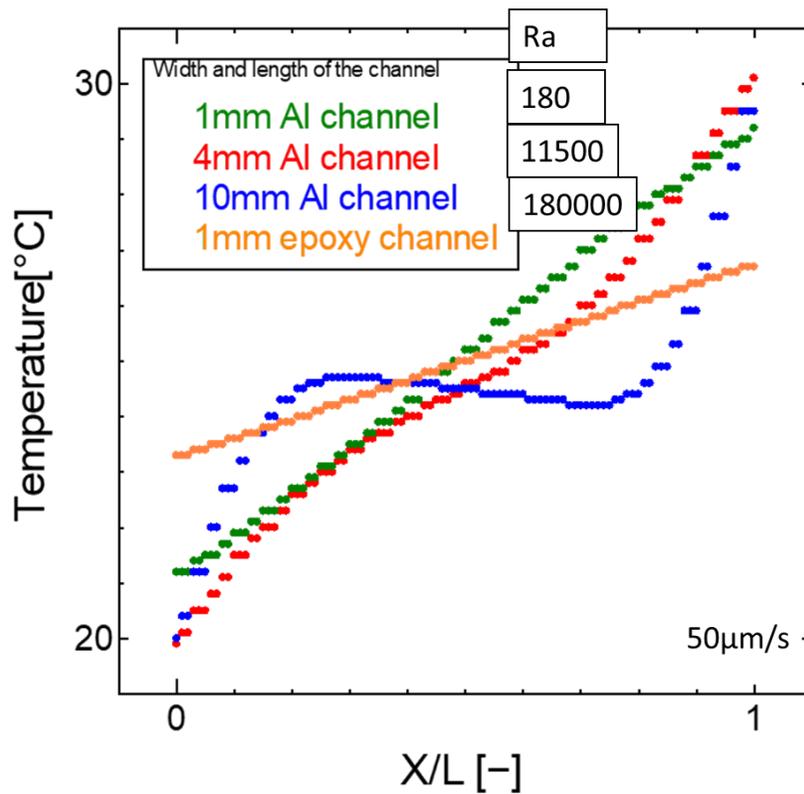


Fig. 71 チャンネルの大きさによる温度分布の違い

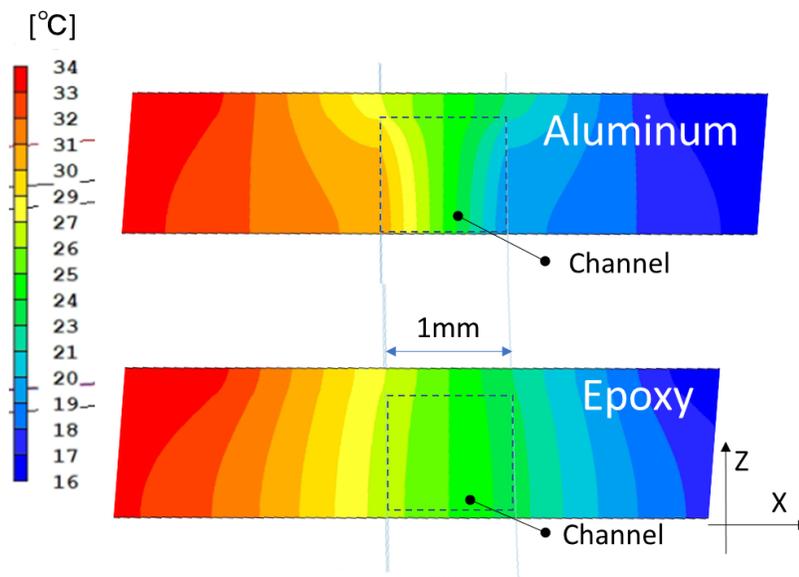


Fig. 72 構造物とチャンネル内部につく温度分布 (Y=20mm)

#### 4.13. 混合効率

マイクロミキサーとしての効率を評価するため、一方の流入流路から細胞を模した物質を流し、様々な条件下で混合効率を算出した。混合にかかる距離と混合達成率を評価するため、混合達成率を $\sigma$ と定義し、以下の式を用いて評価した。

$$\sigma = \sqrt{(C - C_{ave})^2} \quad (4.5.)$$

ここで、 $C$ は任意の流路断面における濃度を示す。 $C_{ave}$ はその計測断面（XY面）における濃度の平均値である。すなわち $\sigma$ は濃度分布の標準偏差である。これは先行研究でも多用される指標である[26][54][55]。2液が完全に分かれているとき、 $\sigma$ は0.5、完全に混合した時は0になる。

Fig. 73は片側のチャンネルから0.1の濃度で物質を流した場合の混合の様子を示す。3種のdTについて示した。なお、 $L=1\text{mm}$ 、 $Z=0.5\text{mm}$ であり流路の中心を観察している。流入流速は $50\ \mu\text{m/s}$ である。dTが $0^\circ\text{C}$ のとき、物質はほとんど混合しないことがわかる。dTが $4.7^\circ\text{C/L}$ のとき、物質は3次的に流れ、距離とともに中間的な値をとり、混合が進行することがわかる。dTが $12^\circ\text{C/L}$ のとき、旋回はより強くなり、短距離で混合が進行することがわかる。温度差があることによって、混合が劇的に進行することが分かる。

Fig. 74は温度差による $\sigma$ の変化を比較したグラフである。 $L=1\text{mm}$ 、流入流速は $50\ \mu\text{m/s}$ である。温度差がないとき、混合は600mm進行してもほとんど有意に進行しないことがわかる。温度差がある場合、混合は劇的に進行することがわかる。ここで、90%の混合達成は $\sigma$ が0.05になった地点である。このため、シグマが0.05になるために必要になる距離を $y_{90}$ と定義する。Fig. 75は、dTと $y_{90}$ の関係を示す。これまでと同様、 $L=1\text{mm}$ 、流入流速は $50\ \mu\text{m/s}$ である。温度差がない場合、600mmの混合距離であっても十分に混合できないが、 $12^\circ\text{C/L}$ のとき、8mmで混合達成が可能である。別条件で利用する場合、作動流体の動粘性係数と流入流速に比例して混合距離を増やす必要がある。

Fig. 76は $L=0.25$ と $1\text{mm}$ のときの混合距離における $\sigma$ の値の変化を比較したグラフである。dTはどちらも $4.7^\circ\text{C/L}$ であり、流入流速は $50\ \mu\text{m/s}$ である。温度差がない場合も、 $L=0.25\text{mm}$ のときは $1\text{mm}$ と比較して混合が速く進むことがわかる。これは流路断面が小

さくなることで、分子拡散によって混合が進むエリアが流路中に占める割合が相対的に大きくなるためである。すなわち、絶対的な体積的としては 1mm 流路と比較して混合した範囲が大きくなるわけではない。しかし、0.25mm の流路では旋回流がほとんど発生しないと考えられたが、温度差がある場合のほうが無い場合と比較して 2 倍以上混合距離が短くなった。1mm 流路に温度差をつけた場合、0.25mm 流路に温度差をつけたときよりも短距離で混合が進んだ。マイクロ流体制御技術では、分子拡散によって混合を完了させるために、非常に細い流路を作成することがある。この結果より、サブミリスケール程度まで流路を拡張し、温度差を与えれば、より混合を進行できることがわかった。流路体積も増大するため、処理量を増大させることも可能であると言える。

Fig. 77 は、チャンネルサイズによる  $y_{90}$  の値を示すグラフである。また、温度差の有り無しも含め、 $y_{90}$  の具体的な値を Table 9 にまとめた。dT は 4.7°C/L である。1mm 以上の大きさの流路では、 $y_{90}$  は 600mm よりも大きくなり、計測不能であったため値を記載していない。4mm の流路で  $y_{90}$  は最も小さい値になった。10mm の流路では 4mm の流路より  $y_{90}$  は大きくなった。自然対流の大きさはスケールの大きさに伴って大きくなるが、この増加率は律速になった。一方で混合に必要な体積はスケールの 3 乗オーダーで増大していくため、4mm 前後で極小値を取ったのち混合距離は増大すると考えられる。4mm 前後が温度を用いたミキシングに最も適したスケールであることがわかる。0.25mm チャンネルに温度差をつけなかったときと比較して、4mm チャンネルに 4.7°C/L の温度差をつけた場合、66 倍混合距離を短縮することができた。この温度差をより大きくすれば 100 倍以上混合距離を短縮することも難しくないと見える。Fig. 78 はチャンネルサイズによる  $y_{90}$  の値を L で除することで無次元化したグラフである。代表長さあたりの混合効率は 4mm からほとんど値が漸近することがわかる。

Fig. 79 は、Ra 数と無次元混合距離  $y_{90}/L$  の関係を示した。黒で示すデータは、動粘性係数にける係数を  $k$ 、境界条件による温度差 dT を 4.7°C と固定し、L を変化させた結果である。赤で示すデータは、動粘性係数の係数を  $k$ 、L を 1mm に固定し、dT を変化させたときの結果である。青で示すデータは、dT を 4.7°C、L を 1mm に固定し、動粘性係数にける係数を変化させたときの結果である。Ra 数が大きいほど混合距離は短くなり、これには  $10 < Ra < 10000$  の範囲で以下の相関があった。

$$y_{90}/L = 15076/Ra \quad (4.5.)$$

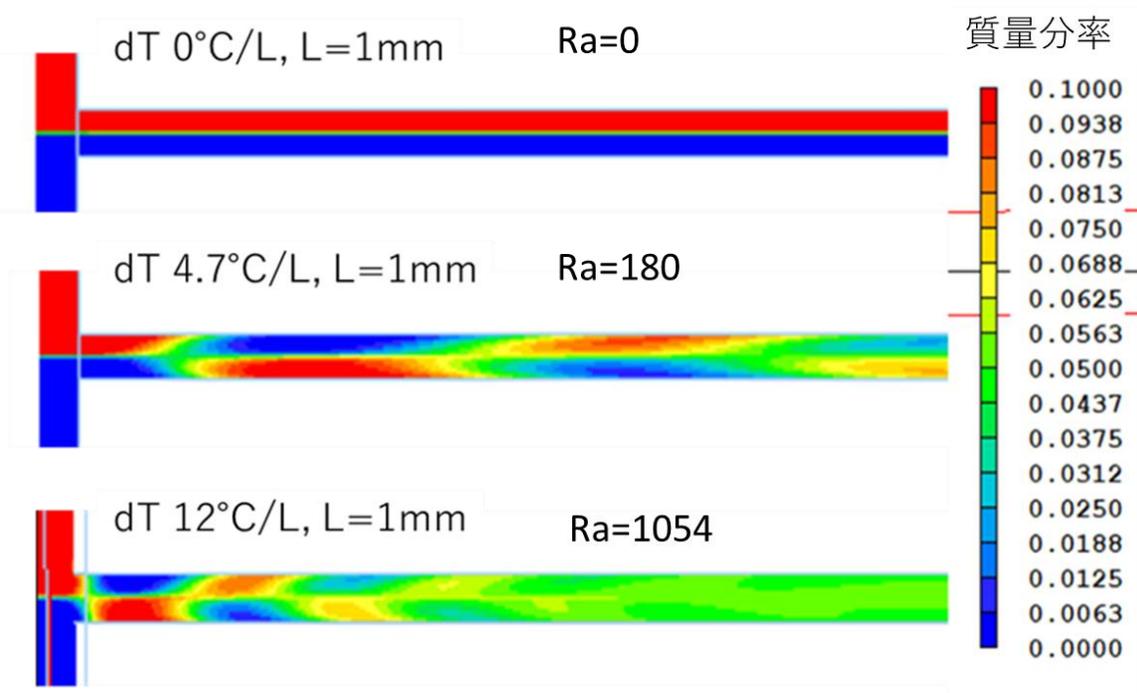


Fig. 73 濃度分布の計算結果. Fig. 73L=1mm,Z=0.5mm .

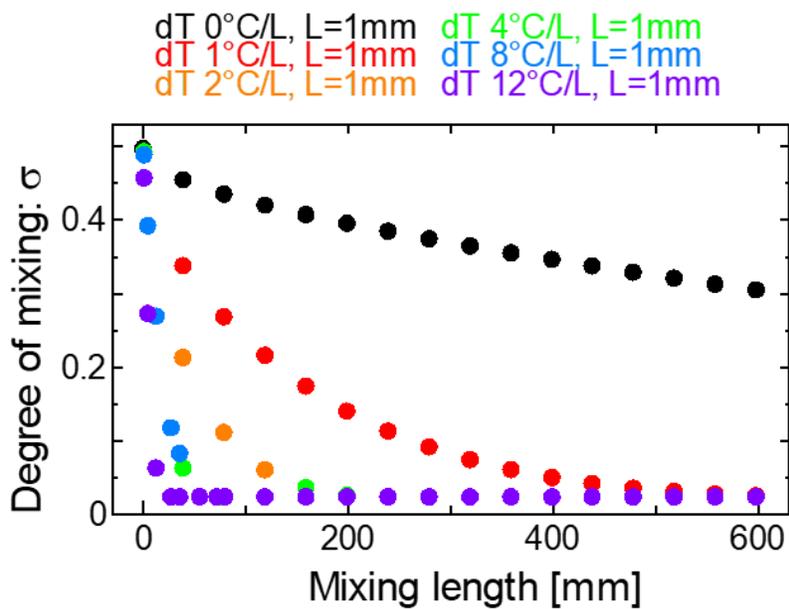


Fig. 74 温度差と混合距離による混合達成率  $\sigma$  の変化

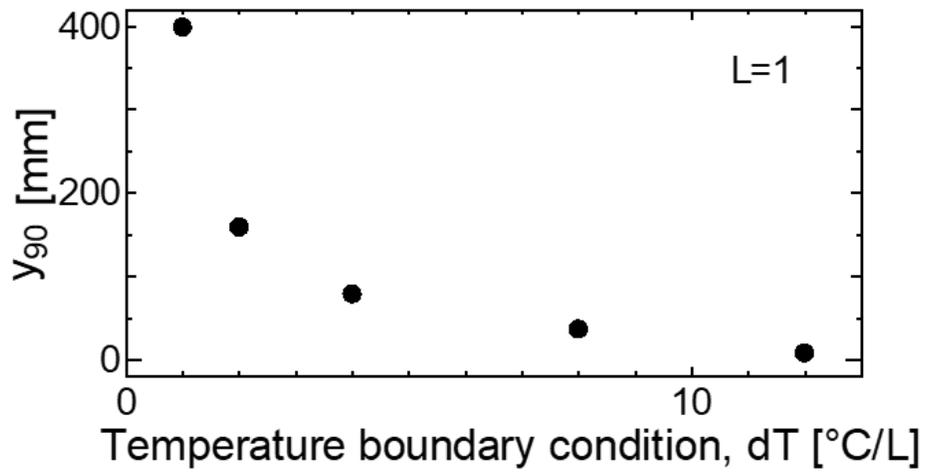


Fig. 75 dT と y<sub>90</sub> の関係

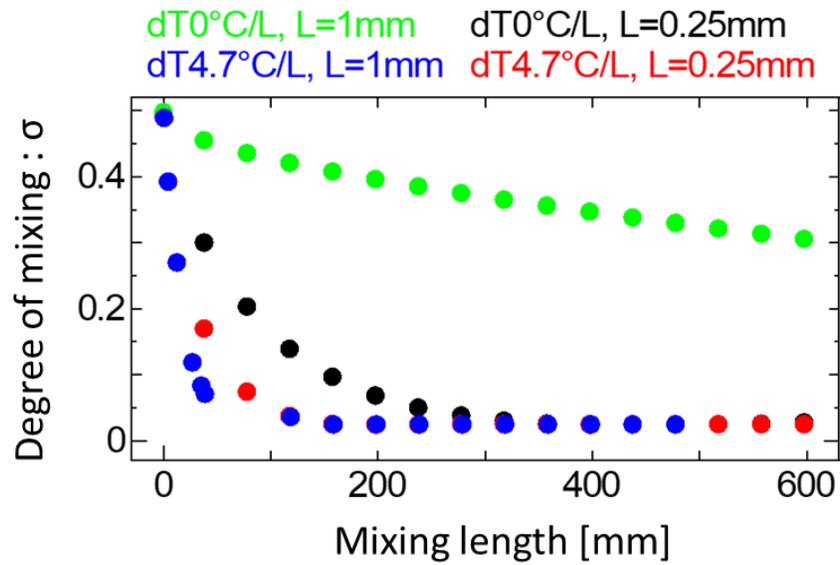


Fig. 76 L=0.25, 1mm による σ の変化の比較

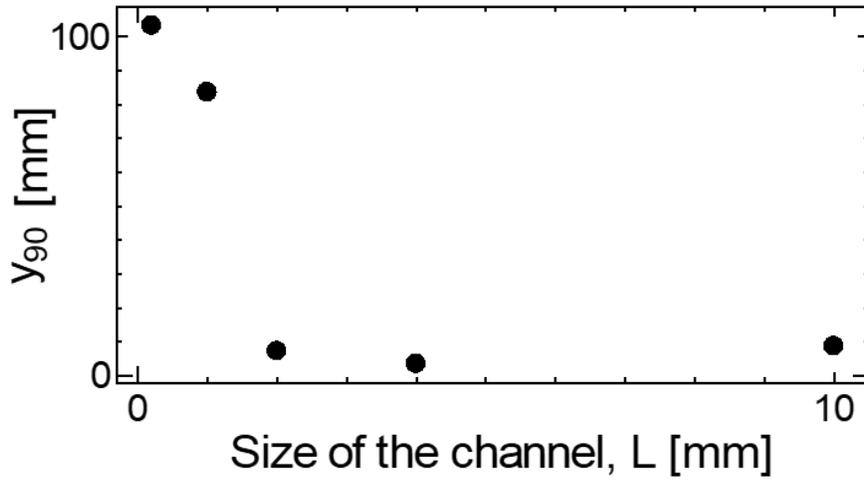


Fig. 77 チャンネルサイズ L による  $y_{90}$  の比較

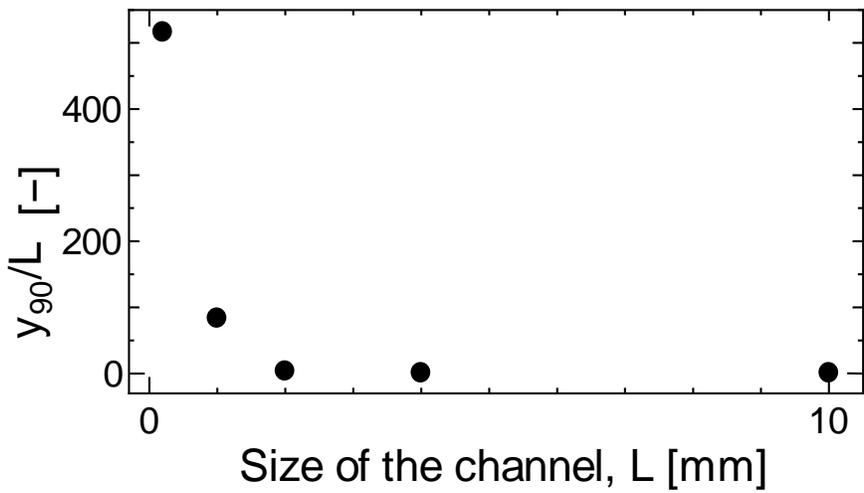


Fig. 78 チャンネルサイズ L と無次元混合達成距離

Table 9 チャンネルサイズと温度差の有無による混合達成距離  $y_{90}$

Channel size L [mm]	dT0 $y_{90}$	dT4.7 $y_{90}$	dT0 $y_{90}/L$	dT4.7 $y_{90}/L$	Pe	Ra
0.25	238.18	103.33	952.70	413.33	257.5	2.8
1	-	83.61	-	83.61	1030	180.3
2	-	7.30	-	3.65	2060	2774.4
4	-	3.56	-	0.89	4120	14677.0
10	-	8.75	-	0.88	10300	214116.0

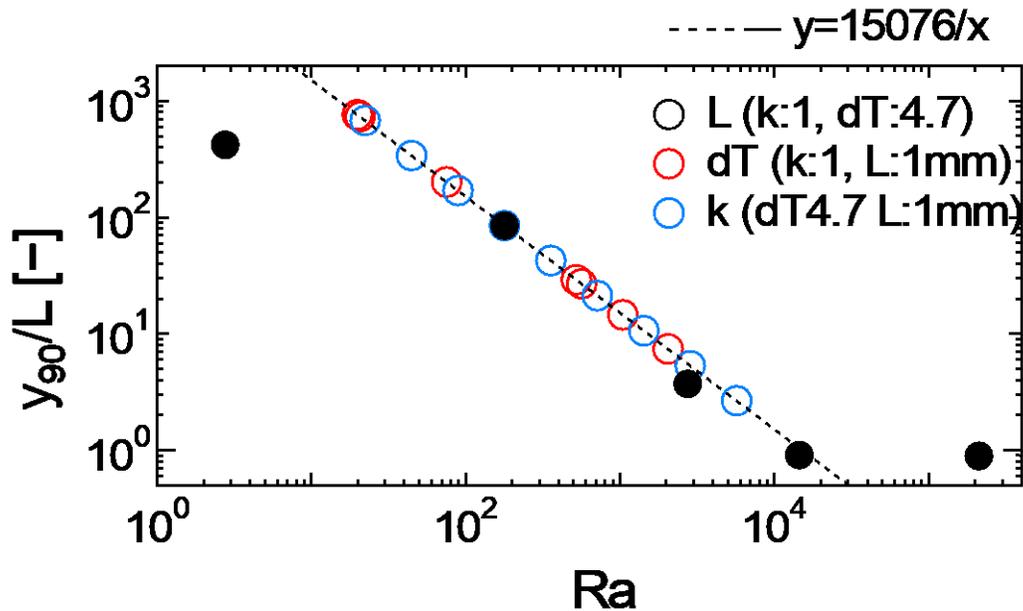


Fig. 79 Ra 数と無次元混合距離  $y_{90}/L$  の関係

#### 4.14. 本現象のマイクロミキサーとしての有効性

旋回流は温度差に比例し、粘度に反比例した。このため、グリセリンなどの高粘度液体を混合するためにはそれに応じた混合距離が必要となる。しかし、マイクロ TAS などの生体分析目的である場合、バッファー液や試薬などは比較的 low 粘度な液体を用いることが多い。また、血液の粘度は水の 5 倍程度であるため、十分な利益を得ることができると思われる。血液は  $5\mu\text{m}$  程度の赤血球などの血液細胞が懸濁した液体であり、分子拡散に

よる混合が進行しにくい。一方で粘性は水に近いので、低粘度液体に旋回流を起こすマイクロミキサーが有効であると考えられる。

Nguyenらはこれまでのマイクロミキサー研究の作動範囲について、Pe数とRe数で整理している。Fig. 80にNguyenらがまとめたグラフを示す。Pe数が大きいほど混合に距離が必要な条件であり、Re数が小さいほど流体は乱れにくく混合しづらい。このため、一般的にPe数とRe数は相関する。Pe数とRe数の比は以下の式ようになる。

$$\frac{Pe}{Re} = \frac{L}{D_h} \frac{\nu}{D} \quad (4.6.)$$

ここで、 $D_h$ は水力直径である。 $D_h$ とLは同じオーダーであることが多いので、 $L/D_h$ は1に近似できる。ここで、水の動粘性係数と拡散係数をそれぞれ $10^{-6}\text{m}^2/\text{s}$ 、 $10^{-9}\text{m}^2/\text{s}$ とすると、水を想定した時にはPeとReには以下の相関がある。

$$Pe = 1000Re \quad (4.7.)$$

先行研究はこの $Pe = 1000Re$ の相関線上に乗っていることがわかる。例えば相関線の右上に乗る、27, 29と示される先行研究は、それぞれSeckらによるものである[57][56]。これらは5 Bar程度の高圧により内部液を駆動させ、乱流遷移域程度の高Re数にすることで内部の流れを乱して混合を促進させる。圧力印加装置が必要であり、内部は高圧となる。一般的なマイクロ流体デバイスはRe数が1以下である。流速も数m/sと、マイクロチャンネルに対して非常に早くなるため制御が難しいといえる。マイクロミキサーは、低Re数で混ぜられるかも重要であるといえ、右上に行きすぎる場合実用的とは言えない。

相関線の左下に乗るマイクロミキサーは、流路を分岐させて流れを狭め、再合流させるものが多い。すなわち強制的にPe数の低い環境を作り、低Re数であっても拡散で混合を進行させる。このため、Pe数100以下程度のものはほとんどがそういった複数流路を持つパッシブマイクロミキサーである。Pe数1000以下のものは拡散を利用して混合させるものが多い。一方でPe数1000以上の場合は、対流を起こさない限り混合が困難な条件であることから、対流支配的なマイクロミキサーが多い。カオス混合を起こすものや、外力を与えるアクティブミキサーがこの範囲に多い。図の右下ほど、Pe数が低くRe数が高いため、拡散で混ぜやすい液体を高Re数で混ぜている傾向が強く、マイクロミキサーとし

での機能性が低いと考えられる。ここではダブルハート型のミキサーなど、挑戦的、もしくは個性的なアイデアのものが多く傾向がある。反対に、左上は Pe 数が高く、Re 数が低いため、低 Re 数で混ざりにくい液体を混ぜる傾向がある。

本研究の実験範囲から得られた Pe 数と Re 数を、Fig. 80 に赤い矢印で示した。本研究は先行研究と比較しても、十分低い Re 数帯で、高 Pe 数の液体を混合することに成功しているといえる。これに加え、本研究の利点は初めて温度差を利用し有効な混合を達成したことである。熱を利用することによって、内部に微細な加工や外力駆動装置などを施さずとも、混合を従来の何十倍以上も進行させることが可能であり、対流を利用して混合を促進できる。本研究は簡易にもかかわらず十分な混合性能を持つマイクロミキサーである考えられる。サブミリスケールは自然対流の影響の変化率が大きい系である。このためマクロスケールと比較して自然対流の影響の割合が大きくなり、混合を効率的に進めることが可能である。また、流れは流路中心軸に対して対称的かつ一様な定常場であり、実験と計算結果もよく一致した。制御と理解が容易な流れ場であるといえ、混合の精密な制御が期待できる。これまでこのスケールで発生する自然対流を利用する試みはなく、本研究は初めてそれに注目し、有効性を示したと考えている。

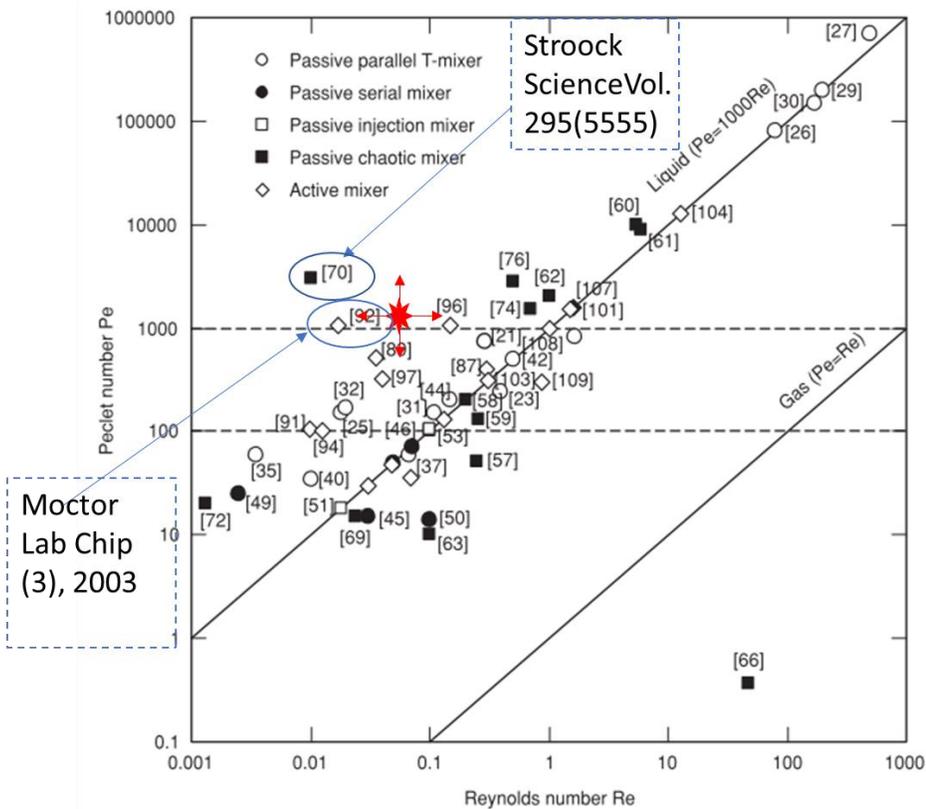


Fig. 80 先行研究におけるマイクロミキサーとの比較[11]

4.15. 旋回流のまとめ

以上の実験と計算の結果から、以下のことが明らかになった。

- ・ 温度差によって、流路幅、高さが 1mm 以下であっても自然対流に起因した旋回流が発生した。
- ・ 温度差が大きいほど旋回強度は強くなり、比例関係にあった。
- ・ 動粘性係数がと旋回強度は反比例の関係にあり、粘度の高い液体についてはその分混合距離や温度差が必要になる。
- ・ 流入流速と旋回強度に関係はなく、流速が速いほど混合に必要な距離が長くなる。
- ・ 4mm 以上の流路内部では液体の温度分布が非線形になり、対流熱伝達の影響が顕在化した。そこから旋回強度の増加率は律速となった。

- ・ 温度差によって、混合を劇的に進行することができた。
- ・ スケールが大きくなるほど旋回強度は増大したが、混合効率が最も良いものは 4mm 前後であることがわかった。
- ・  $10 < Ra < 10000$  の範囲で、Ra 数と混合達成距離の間には逆比例の相関があった。
- ・ サブミリスケールは自然対流を利用した精密な混合が可能である。

## 5. ペルチェ素子を駆動する際の急速な速度変動

本章では、ペルチェ素子の入力と遮断の瞬間に発生する急速な速度変動について特性を調査し、マイクロ流体制御技術としての有効性について考察する。ここで、急速な速度変動の定義を行う。ペルチェ素子を入力する前の0~10sの平均速度と、ペルチェ入力後の最低速度の差を  $I_{min}$  と定義する。同様に、ペルチェ素子を遮断する前の20~45sの平均速度とペルチェ素子遮断後の最高速度の差を  $I_{max}$  と定義する。Fig. 81 に  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  を図示した。

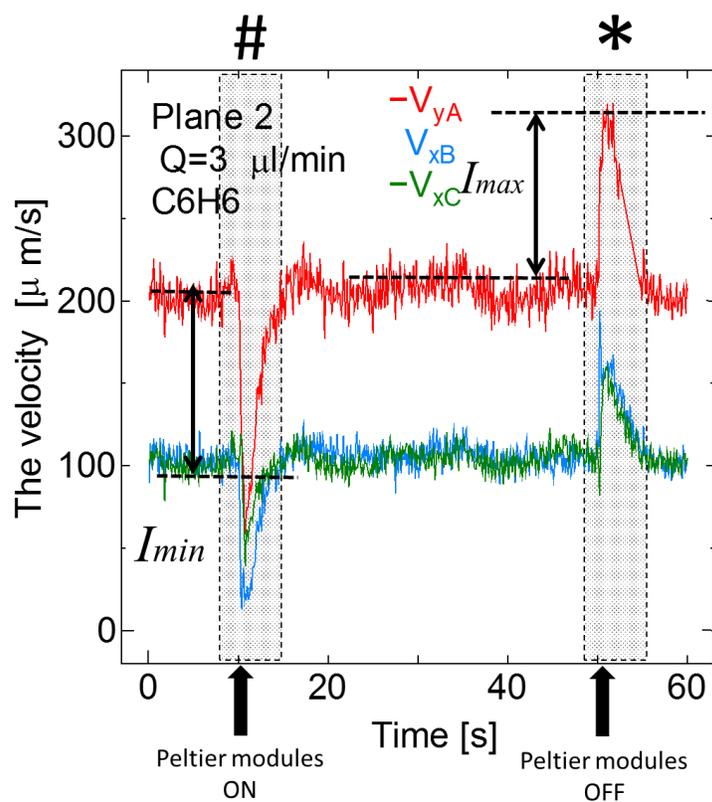


Fig. 81  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の定義

### 5.1. 電圧・流量による $I_{max}$ , $I_{min}$ の値の変化

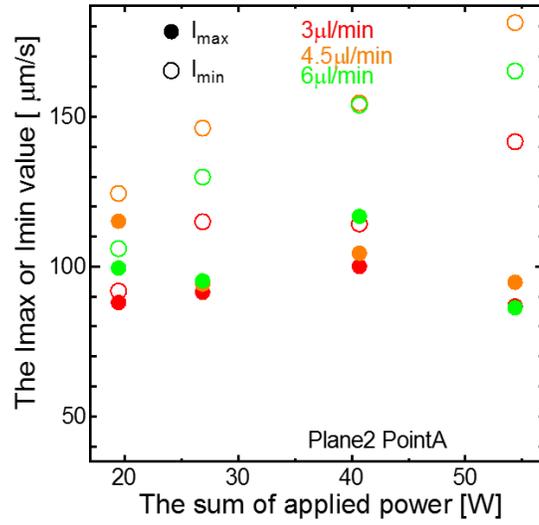
Fig. 82 は, Plane2 における, ペルチェ印加電圧と  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の値の関係である. 横軸はペルチェ素子に印加した電力を示しており, 二つのペルチェ素子の合算値である. 黒塗りの点は  $I_{max}$  を示し, 白抜きの点は  $I_{min}$  を示す. 合流部の点 A, 冷却側流入部の点 B, 加熱側流入部の点 C についてそれぞれの結果を示す.

$I_{max}$ ,  $I_{min}$  の値は電力に伴って上昇する傾向がある. また, 同条件の場合,  $I_{max}$  と  $I_{min}$  の値は近い傾向がある.  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の値は流量に依存した傾向はみられなかった. データはばらつきが大きい結果となった. この現象が瞬間的であることに対して, カメラの時間分解能が十分でないことがデータのばらつきの原因として考えられる. 点 A の値は点 B, C の約二倍程度の値になっていることがわかる. これは点 A が合流部であることから, 上流部である点 B, C の速度変動の合算値に近い値を示すと考えられる.

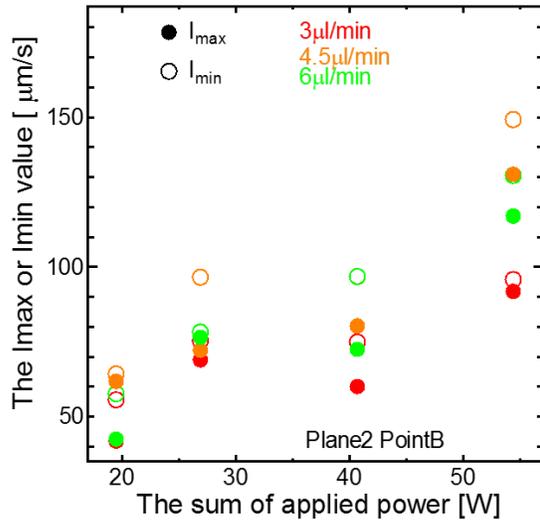
Fig. 83, Fig. 84 には Plane2 以外の 4 断面における  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の値をプロットしたグラフである. Plane2 だけではなく, 全ての断面で同様の傾向があることがわかる. Table 10 は, 各断面における点 A の  $I_{min}$  の値をまとめたものである. Plane2 が最も大きい値をとり, 壁面に近づくほど値が減少する結果となった.

次に, 各条件における急速な速度変動の変化開始時間を調べた. ペルチェ素子入力前の速度の平均データに対して, 速度の変化が標準偏差を超えた点を変化開始時刻として算出した. 断面は Plane0, 2, 4, 点 B と点 C について算出した. Table 11, Table 12, Table 13 に各条件における変化開始時間をそれぞれ示す. 点 C の変化開始速度が点 B に比べて早いことがわかる. また,  $I_{max}$  よりも  $I_{min}$  のほうが変化開始時間が遅いことがわかる. 断面による変化開始時間は大きく変化しなかった. また, 電圧の条件によって変化開始時間は有意に変化しなかった.

Plane 2 Point A



Plane 2 Point B



Plane 2 Point C

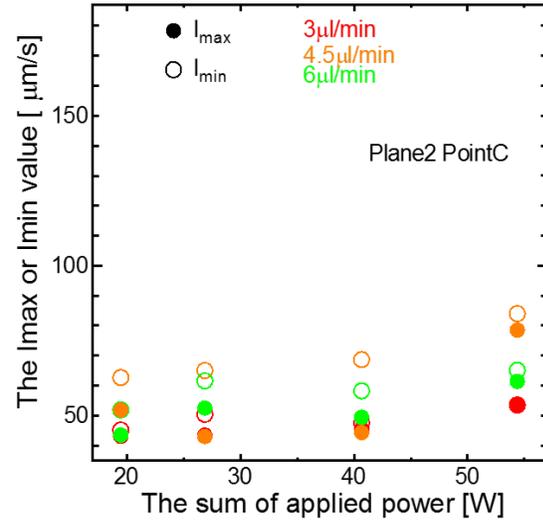


Fig. 82 Plane2における電圧と  $I_{max}, I_{min}$  の関係

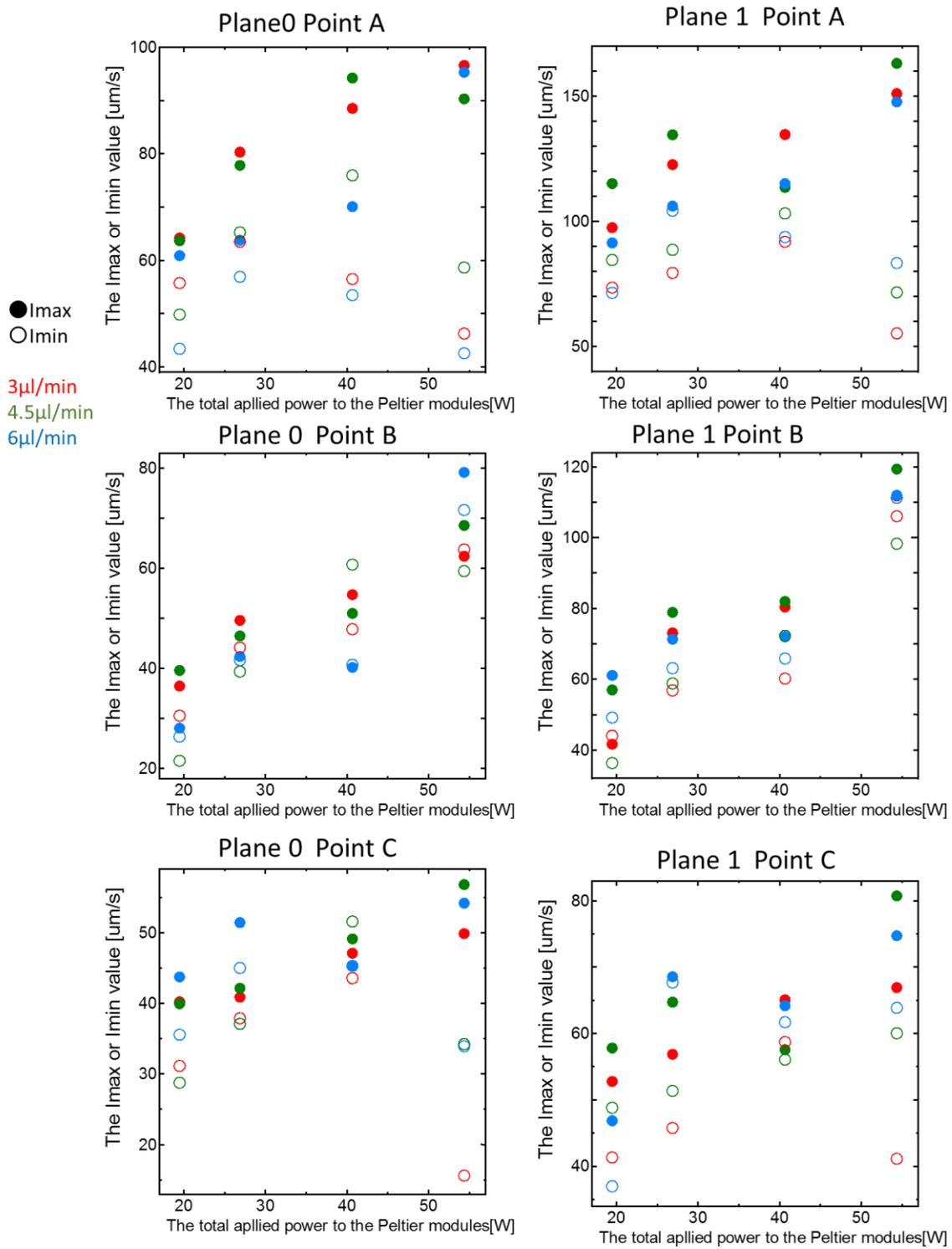


Fig. 83 Plane0,Plane1 における電圧と  $I_{max}, I_{min}$  の関係

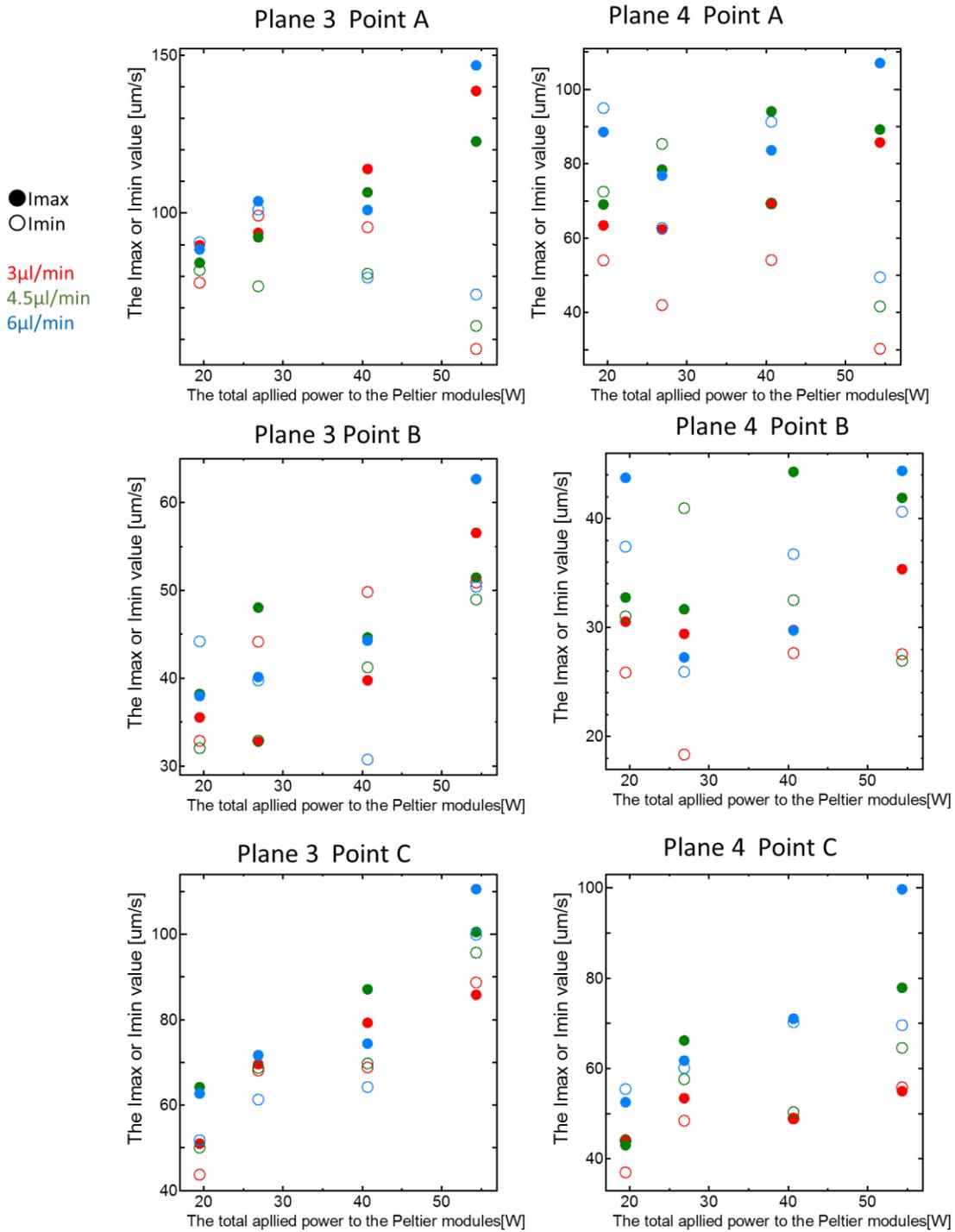


Fig. 84 Plane3,Plane4 における電圧と  $I_{max}, I_{min}$  の関係

Table 10 各断面における点 A での  $I_{min}$  の値

[ $\mu\text{m/s}$ ]	plane0	plane1	plane2	plane3	plane4
C6H4	62.9	101.3	107.3	87.4	73.6
C6H6	73.9	121.0	130.2	96.5	72.5
C8H6	84.2	121.0	140.8	107.1	82.3
C8H8	94.0	153.8	162.7	135.9	93.9

Table 11 Plane 0, 点 B,C における速度変化開始時間.

Plane0		point B		pointC	
Q[ $\mu\text{l/min}$ ]	Voltage	I <sub>max</sub> [s]	I <sub>min</sub> [s]	I <sub>max</sub> [s]	I <sub>min</sub> [s]
3	C6H4	50.5	10.7	50.3	10.4
	C6H6	50.5	10.7	50.1	10.5
	C8H8	50.6	10.7	50.1	10.4
4.5	C6H4	50.5	10.7	50.3	10.3
	C6H6	50.4	10.7	50.1	10.3
	C8H8	50.5	10.7	50.1	10.3
6	C6H4	50.4	10.8	50.1	10.3
	C6H6	50.3	10.7	50.3	10.5
	C8H8	50.3	10.7	50.3	10.5
	average	50.44	10.71	50.19	10.39

Table 12 Plane2, 点 B,C における速度変化開始時間.

Plane2		point B		pointC	
Q[ $\mu\text{l/min}$ ]	Voltage	I <sub>max</sub> [s]	I <sub>min</sub> [s]	I <sub>max</sub> [s]	I <sub>min</sub> [s]
3	C6H4	50.5	10.9	50.1	10.3
	C6H6	50.5	10.7	50.3	10.4
	C8H8	50.5	10.6	50.1	10.4
4.5	C6H4	50.5	10.7	50.3	10.3
	C6H6	50.4	10.7	50.1	10.3
	C8H8	50.5	10.7	50.2	10.3
6	C6H4	50.4	10.8	50.1	10.3
	C6H6	50.3	10.7	50.3	10.5
	C8H8	50.3	10.7	50.3	10.5
	average	50.43	10.72	50.20	10.37

**Table 13 Plane4, 点 B,C における速度変化開始時間**

Plane4		point B		pointC	
Q[ $\mu$ l/min]	Voltage	I <sub>max</sub> [s]	I <sub>min</sub> [s]	I <sub>max</sub> [s]	I <sub>min</sub> [s]
3	C6H4	50.4	10.6	50.2	10.4
	C6H6	50.4	10.6	50.1	10.3
	C8H8	50.4	10.6	50.1	10.4
4.5	C6H4	50.4	10.7	50.3	10.3
	C6H6	50.4	10.6	50.2	10.3
	C8H8	50.5	10.7	50.1	10.4
6	C6H4	50.4	10.8	50.1	10.3
	C6H6	50.3	10.6	50.2	10.4
	C8H8	50.4	10.7	50.3	10.5
	average	50.40	10.66	50.18	10.37

## 5.2. ペルチェ素子の入力と遮断の瞬間における流動と温度変化

急速な速度変動の詳細を調査するため、時間のスケールを短くして流速と温度場の変化を比較することにした。Fig. 85 は、Plane2 について示した図である。実線は前述した3点での速度を示す。点線で示すデータは LIF の輝度比である。図中の#と\*は、Fig. 81 に網枠で示すエリアと対応する。グラフの右側には、特定の瞬間における PIV で取得した速度マップと、LIF の輝度比マップを示す。なお、図において、流路右側のペルチェ素子を加熱、左側は冷却運転した。電圧は加熱側・冷却側ともに 6V を加えた。

まずペルチェ素子入力の瞬間に着目した#についてデータの考察を行う。PIV の速度マップや、点 B,C における流速からも、はじめは左右が均等な流れ場を形成していることがわかる。10.0 秒にペルチェ素子を入力した直後、加熱側である点 C が減速することがわかる。0.1 秒単位で PIV による速度計算を行ったが、入力後の 0.1 秒にはすでに速度応答が起きており、高速な反応であることがわかる。この時点で R 値は有意に変化しないことがわかる。その後、冷却側である点 B が減速した。点 B が減速しはじめた 0.3s の時点でも R 値は有意に変化をはじめていない。このため、この急速な速度変動は温度が原因でないと考えられる。速度マップに注目する。10.2s では加熱側の流速が全体的に減少することがわかる。減速は局所的ではなく、放物線状の速度分布を保ちながら全体的に減速していることがわかる。その後、10.6s で冷却側の流速が減少した。同時刻の R 値に注目する。10.0 s における R 値は、ペルチェ素子入力前であるため、均一な温度場を示す。画像右上のエリアに値が大きいエリアが存在するが、これは水銀灯の明滅による瞬間的なノイズで

ある。すでに加熱側が速度応答をしている 10.2s の時点で大きな温度変化はない。10.6 s の時点で、加熱側の T 字の壁面から徐々に流体へ熱が伝導していく様子がわかる。11.0 s の時点で T 字流路の水平方向に温度差が形成される。急速な速度変動は、流路の中心まで熱が伝わる前に起きるといえる。

次に、ペルチェ素子遮断の瞬間の時間詳細である \* についてデータの考察を行う。まず、R 値の時系列変動と、10.0s における R 値のマップより、ペルチェ素子の運転によって、水平方向に温度差が生じることがわかる。10.0 秒にペルチェ素子を遮断した直後、加熱側である点 C が加速することがわかる。入力時と同様に、点 C の方が点 B よりも応答が早くなり、0.1s の時点で急速な速度変動が生じた。その後点 B が加速した。先ほどと同様に急速な速度変動が起きている時間帯に、大きな温度変化は起きなかった。このため、内部の液体の温度変化に起因する流れではないと考えられる。

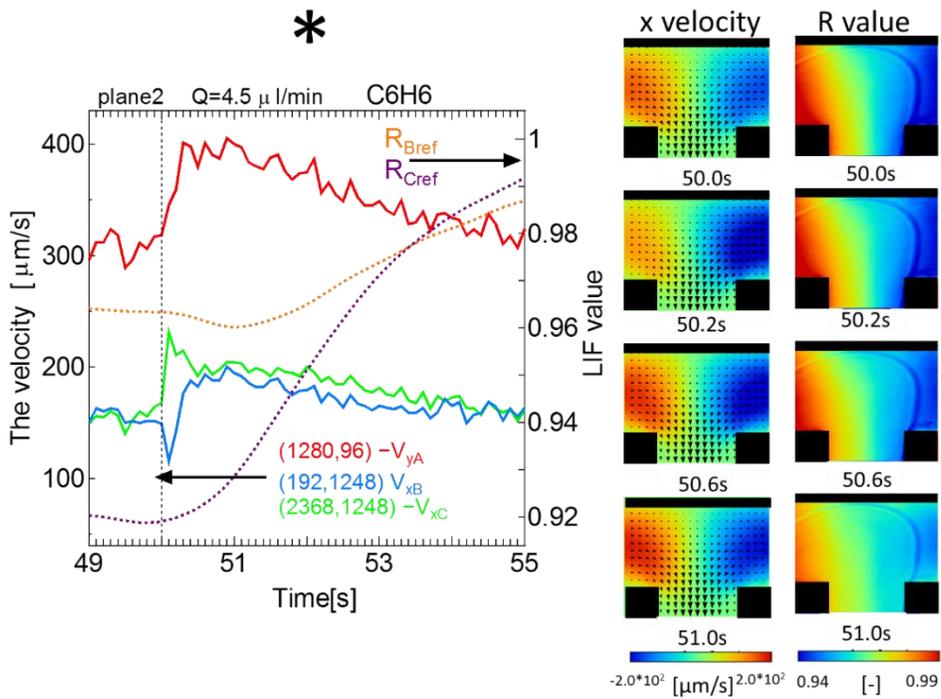
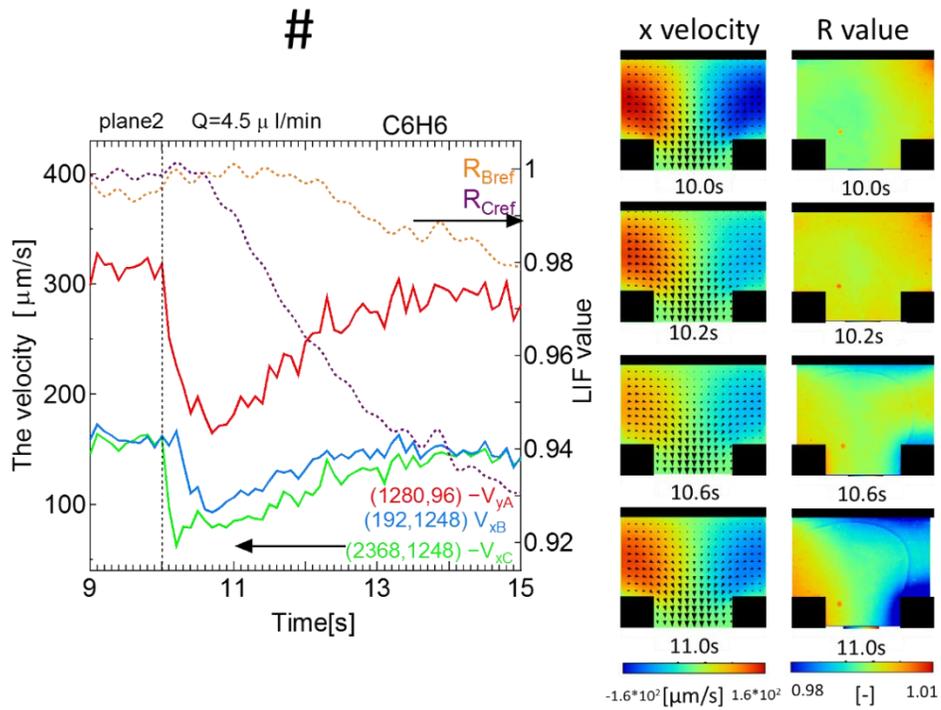


Fig. 85 ペルチェ素子入力・遮断直後の流動

### 5.3. 電圧上昇速度による $I_{min}$ の特性

急速な速度変動の原因を調査する目的と、この現象をマイクロソーティング技術として用いる場合に、制御パラメータとして利用できる可能性があるため、電力の上昇速度による、 $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の特性を調査した。これまでの計測ではパルス的に上昇する電圧を加えたが、線形的に増大する電圧を加えた。電圧が 100% に達するまでにかかる時間を、0.1, 0.5, 2, 4, 8, 12, 20, 40s と変化させた。流量は 3 $\mu$ l/min, 電圧は C6H4, 観察断面は Plane3 で統一した。120 秒間のデータを取得した。計測開始 10s の時点でペルチェ素子を入力し、計測終了までペルチェ素子を運転させ続けた。

Fig. 86 は、電圧上昇にかかる時間を 0.5, 8, 20 s に設定した際の速度変動と、同時刻の電圧と電流の安定化電源からのアナログ出力値を示す。0.5 s のときに比べて、8s, 20 s のデータでは  $I_{min}$  が小さくなることがわかる。また、減速の下限ピークを迎える時間が遅れる様子がわかる。電圧上昇にかかる時間が 20s のとき、 $I_{min}$  のピークがデータのノイズに埋もれ視認しにくくなることがわかる。

Fig. 87 は電圧上昇にかけた時間と点 A における  $I_{min}$  の関係を示すグラフである。電圧上昇にかかる時間が短いほど  $I_{min}$  の値が大きいことがわかる。上昇時間の増大に伴い  $I_{min}$  は急激に減少する。

電力を加え始めてから速度の下限ピークを迎えるまでの時間と、速度が下限ピークを迎えてから回復するまでの時間をそれぞれ  $t_1, t_2$  と定義し、算出した。Fig. 88 の左図に  $t_1, t_2$  の定義を示す。右図は、電圧上昇にかかる時間と  $t_1, t_2$  の関係を示したグラフである。電圧印加後に 100~120 秒の平均速度に初めて到達した時間を  $t_2$  とした。電圧上昇にかかる時間が長いほど、ピークは低くなり、 $t_2$  の値はノイズの影響を受けやすくなる。このため、安定後の速度に対しての回復率が 50%, 60%, 70%, 80%, 90%, 100% に到達した時点での  $t_2$  をそれぞれ算出し、比較することとした。8s 以降のデータについては、算出が困難であったためデータを省略した。Fig. 88 の右図に、電圧上昇にかかる時間と  $t_1, t_2$  の関係を示す。 $t_1$  は電圧上昇にかかる時間が長いほど値が大きい。一方で  $t_2$  は電圧上昇にかかる時間が長いほど値が小さい傾向があった。

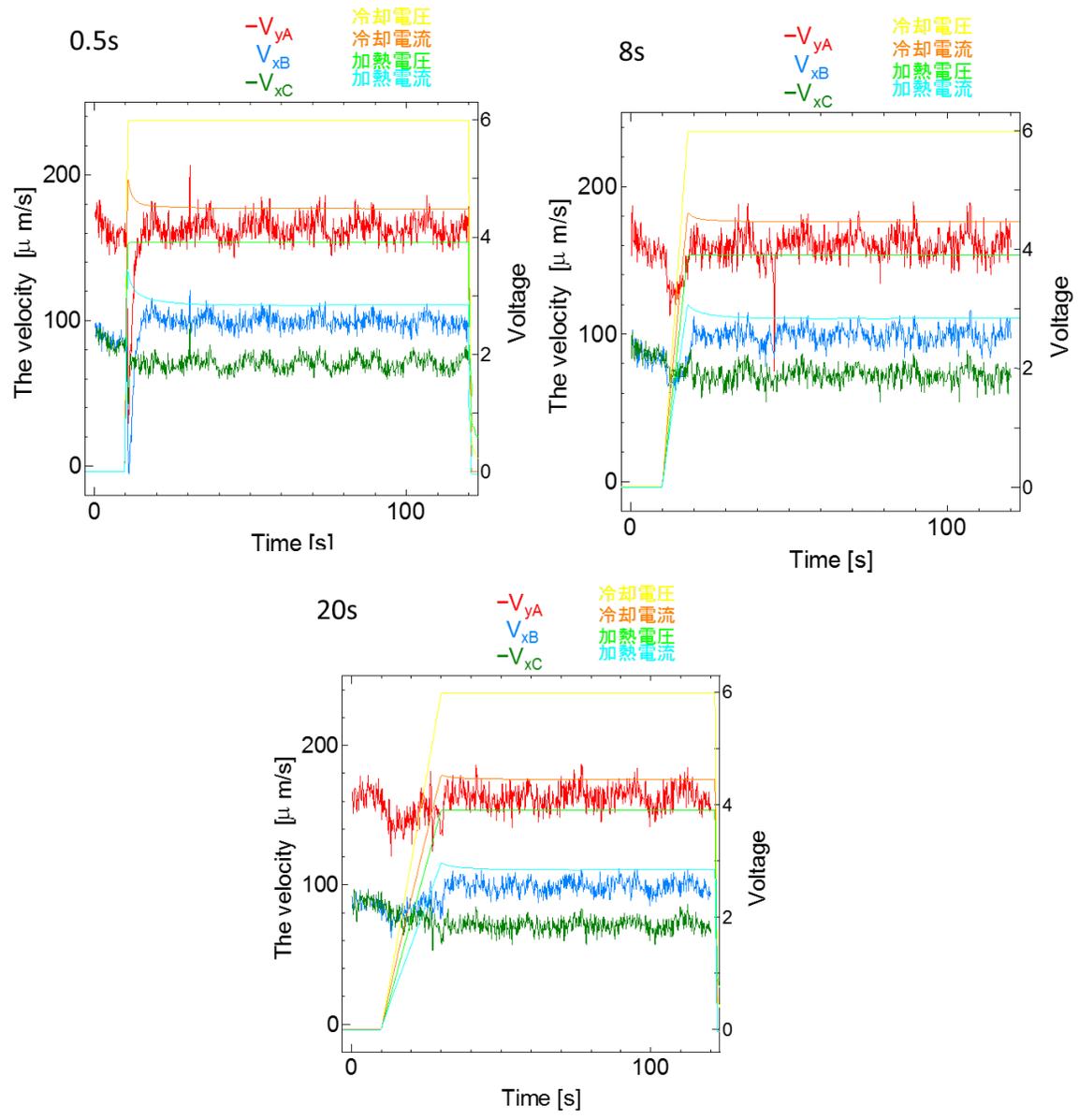


Fig. 86 電圧上昇にかける時間を変化させたときの速度変動

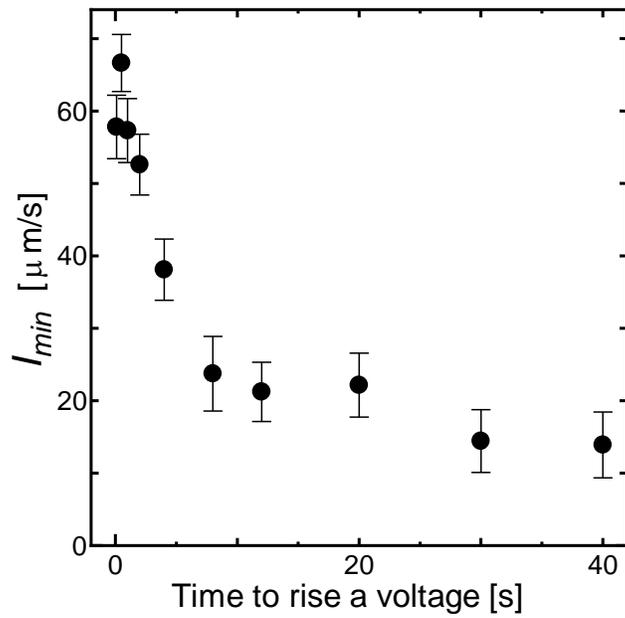


Fig. 87 電圧上昇にかけた時間と  $I_{min}$  の関係

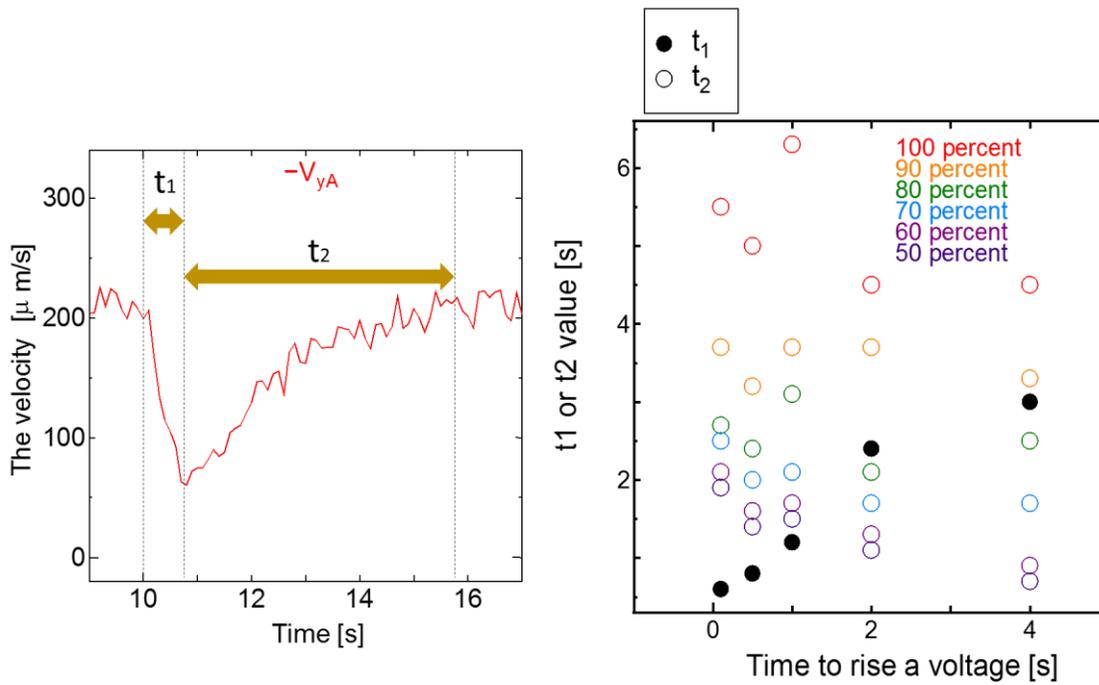


Fig. 88  $t_1$  と  $t_2$  の値と電圧上昇時間の関係

#### 5.4. 流路形状による $I_{max}$ , $I_{min}$ の特性評価

流路形状によって急速な速度変動の特性が変化するか調査を行った。

Fig. 89, Fig. 90, Fig. 91 は狭い流路・縮流のない流路・浅い流路についてそれぞれ、計測 5 断面について、点 A,B,C における  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  と電力条件の関係を示したグラフである。浅い流路については流路中央位置と、上下壁面からそれぞれ  $133\mu\text{m}$  の位置について 3 断面のみ計測した。それ以外の流路については基準流路と同様に 5 断面を計測した。なお、シリンジポンプによる流量条件は、流入部の断面平均流速が 50, 75,  $100\mu\text{m/s}$  になるように設定した。

全ての流量、すべての断面において、 $I_{max}$  と  $I_{min}$  の値は加えた電圧に依存して大きくなる傾向がみられた。また、実験条件が同じとき、 $I_{max}$  と  $I_{min}$  の値は同程度の値になることがわかる。また、流量に依存性がないことがわかる。

流路による  $I_{max}, I_{min}$  の大きさに着目すると、浅い流路が大きい値をとる傾向にあった。浅い流路は、ペルチェを配置するアルミニウム壁面からスライドガラスと接触する流路側のアルミニウム壁面までの厚さが  $1\text{mm}$  であり、他の条件は  $1.5\text{mm}$  である。薄いため、変形があれば影響を受けやすいと考えられる。また、基準流路の  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の値に対して、流路形状を変化させた場合は概して大きい値をとることがわかる。これは基準流路に対して流路の容積が小さいことが影響している可能性がある。ペルチェ素子による急速な速度変動は作動流体体積や、流路形状によって変化する可能性があるといえる。しかし、電圧依存性や、流速に依存しない性質などは、流路の形状によって大きな変化は見られなかった。

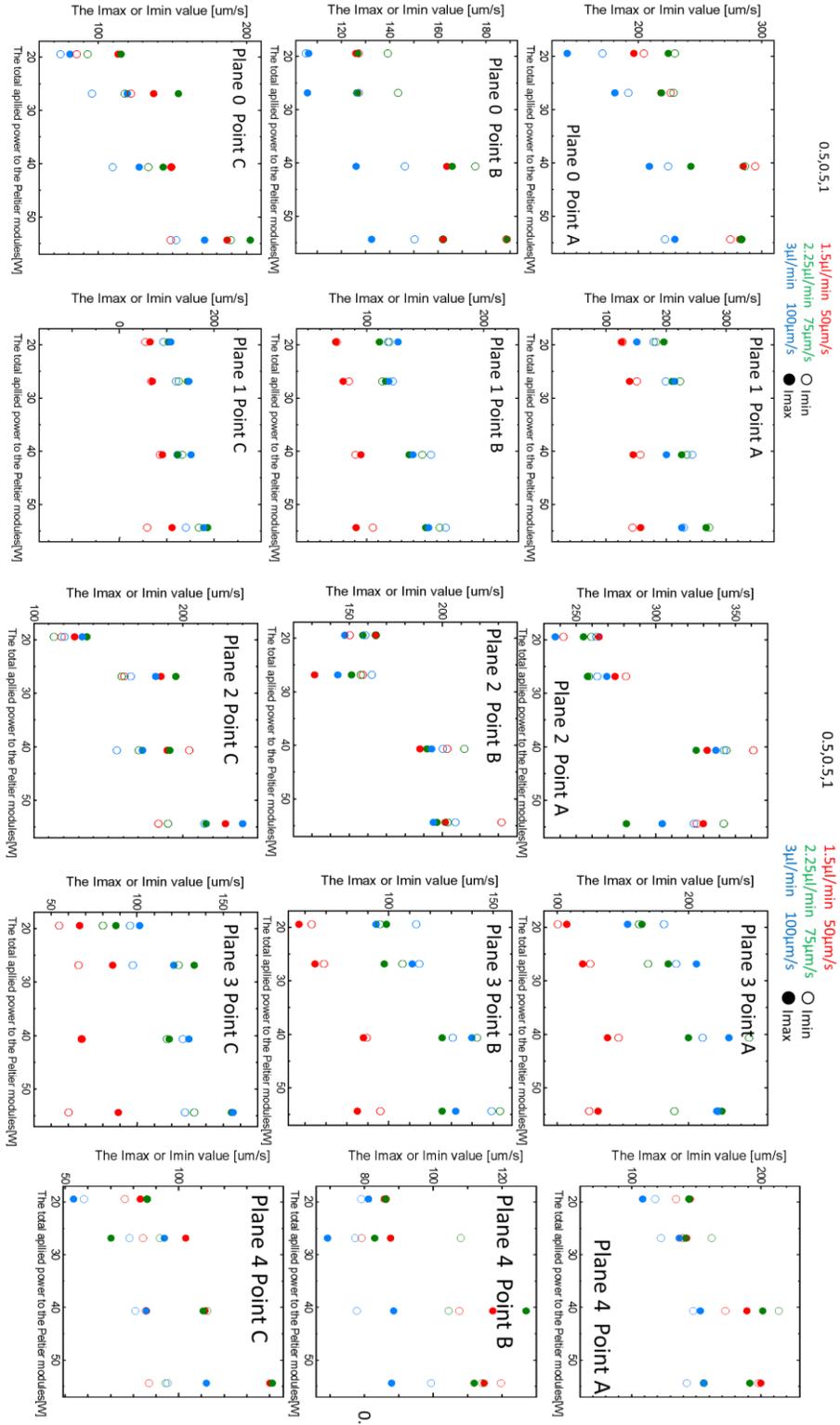


Fig. 89 0.5,0.5,1(深さを変えず幅を狭くした流路)流路における  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の値と電力の関係



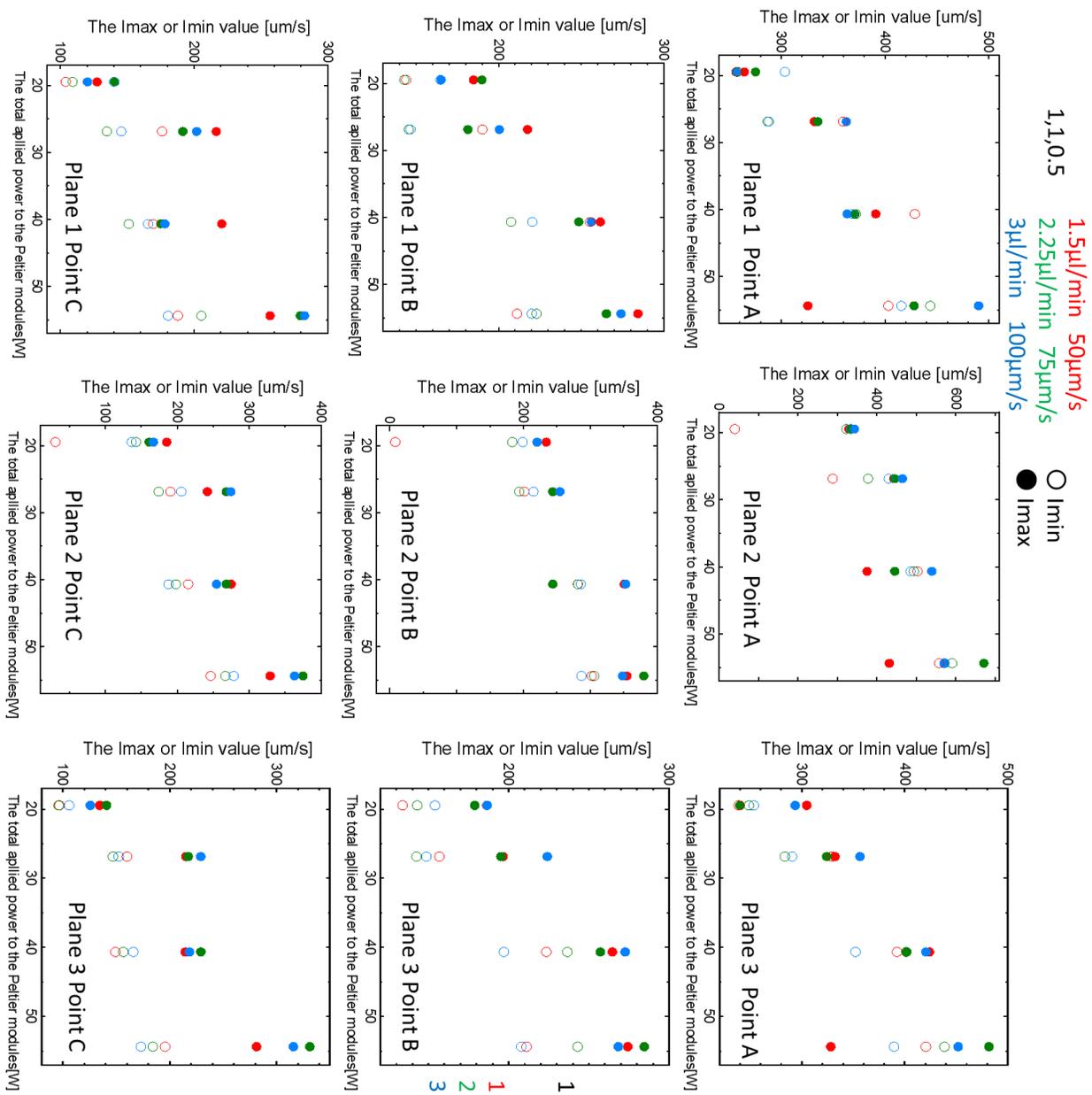


Fig. 91 1,1,0.5(幅を変えずに浅くした流路)流路における  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の値と電力の関係

以上の結果より、ペルチェ素子によって流体が瞬間的に動き、これは電力条件に依存することがわかった。以上の結果のみではメカニズムを特定することが難しいため、更なる検証を行う。

内部流体の温度変化より早く速度変動が起きたことから、電氣的な力によって流れが誘発される可能性があると考え、電気浸透流に起因するパラメータについて調査した。また、電圧入力と遮断の瞬間にペルチェ素子そのものが変形する可能性があると考え、圧力や変位を調査した。このうち、流路観察窓の材質を変更し、 $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の値の変化を調査した。終わりに、本現象を利用するマイクロ流体制御技術について提案を行う。

### 5.5. 電気浸透現象の検証

ペルチェ素子によって発生する急速な速度変動は内部液体中の温度場の発達より早く起きたため、電場によって起きている流れである可能性を検討する。

まず、本研究の方法でペルチェ素子を駆動させた場合に発生する電流と電圧を調査した。直流安定化電源を用いて、6Vでペルチェ素子を駆動させたとき、ペルチェ素子にかかる電圧と、流れる電流値を時系列に計測した結果が Fig. 92 である。これまでと同様10秒で入力し、50秒で遮断した。10秒で入力する際、電圧は矩形状に立ち上がる。電流はオーバーシュートしたのち、一定値に落ち着くが、このオーバーシュート量は大きくないことがわかる。ペルチェ素子を遮断すると、電流は矩形状に立ち下がり、電圧は急速に減少した後、1Vからは徐々に減衰することがわかる。このことから、特徴的なインピーダンス特性や、激しいオーバーシュートなどは起きておらず、外部に大きな電場が発生しているとは考えにくい。

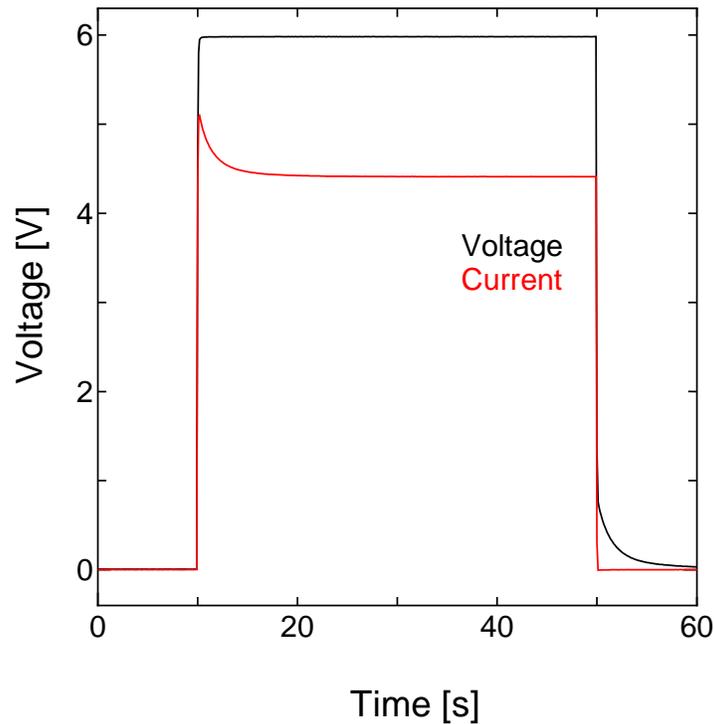


Fig. 92 ペルチェ素子駆動時の電流と電圧

電場によって駆動する流れとして、1.3.2で説明した電気浸透流が良く知られている。これらは電離性の液体で良く発生し、pHに流速が依存する特性がある。このため、作動流体のpHを調整し、速度変動を調査した。作動流体にはpH標準液、純水、水道水を用いた。pH標準液はモノタロウ社製、pH4、pH7を。それぞれについてPIV粒子を混ぜたのち、速度計測の前にpH計でpHを計測した。電気浸透流は電離性液体が壁面近傍でイオンのパターンを形成することによって発生するため、これが発生しない無極性溶媒としてヘキサンを用い、ペルチェ素子印加時の流動を調査した。

また、電場を発生させた際の流動を観察するため、ペルチェ素子を配置する場所にφ1.5の導線を配置し、電位差を発生させることで電場を作った。導線間隔は1、2、5、10mmとし、8.8Vの電圧をかけた。Fig. 93に導線により電場を発生させる実験のイメージを示す。一般的に直流電源により装置を駆動する際には周囲に電場は発生しないが、高周波をかけた場合電場が発生することが知られている。本研究では、ペルチェ素子を駆動する瞬

間に速度変化が発生するが、これは電源のスイッチングにより、この非常に短い時間帯においてのみ高周波によって発生する電場が発生する可能性があると考えた。

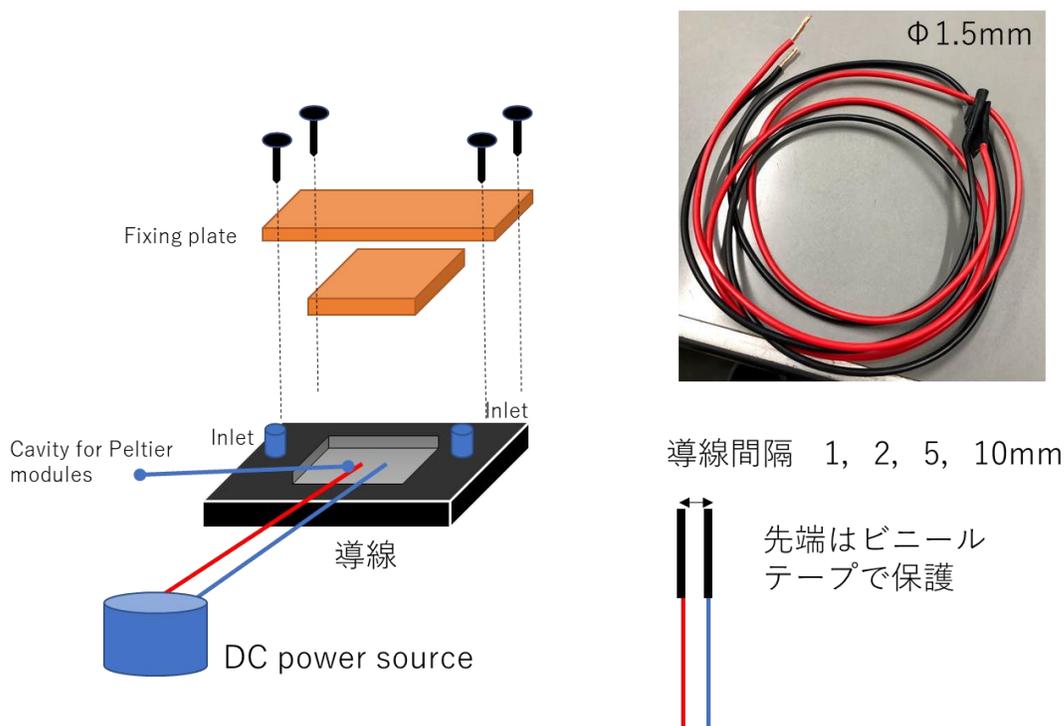


Fig. 93 導線による電場発生方法

Table 14 に pH による  $I_{max}$  の値の違いを示す。pH を変えても規則的な  $I_{max}$  の変化は検出できなかった。どの条件においても速度変化が発生した。

Table 15 に、ヘキサンを作動流体にした際の  $I_{max}$  の値を示す。無極性溶媒であっても急速な速度変動が発生した。

Table 16 に、導線による電場で発生する  $I_{max}$  の値を調査した結果を示す。流動は全く変化せず、値を算出することができなかった。導線による電場では流動は起きないことがわかる。

**Table 14** pHによる  $I_{max}$  の値

	pH	$I_{max}$ [ $\mu\text{m/s}$ ]
pH standard solution	4	184.33
Pure water	6.9	135.42
Tap water	7.2	343.88
pH standard solution	11	184.33

**Table 15** ヘキサンを作用流体にした際の  $I_{max}$  の値

	pH	$I_{max}$ [ $\mu\text{m/s}$ ]
Hexane	4	184.33

**Table 16** 導線電場による速度変動  $I_{max}$  の値

Interval between the lead wire[mm]	$I_{max}$ [ $\mu\text{m/s}$ ]
1	-
2	-
5	-
10	-

## 5.6. 電磁場解析ソフトによる電場の計算

ペルチェ素子周囲に発生する電場の特徴があるか調査するため、電磁場解析ソフトによる過渡電磁場の解析を行った。ソフトには Fujitsu の Poyiting を使用した。ソルバーは Finite-Difference Time-Domain Method (FDTD 法) である。Maxwell 方程式を時間と空間について差分法で解く方法であり、過渡的な電磁場解析を行うことができる。

Fig. 94 に電磁場解析のジオメトリを示す。ペルチェ素子全体の大きさは  $20\text{mm} \times 20\text{mm}$  厚さは  $5\text{mm}$  である。内部に p 型と n 型の半導体素子をそれぞれ交互に 32 個ずつ配置し、それぞれの半導体の間を完全導体で蛇腹状に連結させた。蛇腹状につないだ半導体の端部を完全導体で連結させ、図中に示す位置を給電点として電圧を与えた。半導体はそれぞれ  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ ,  $\text{Bi}_2\text{Si}_3$  である。それぞれの比誘電率を 80, 30, 導電率を  $110000[\text{S/m}]$  と設定した。緑で示す位置にセラミックスのプレートを設定した。電磁場解析は無限に広がる電磁波を有限領域で計算するため、計算領域の外側に吸収境界条件を設ける必要がある。この吸収境界条件は Mur1 次境界とした。

給電点に印加する時系列電圧を Fig. 95 に示す。ペルチェ素子の入力時を模擬し、 $5000\text{ps}$  かけて線形的に立ち上がり、その後低電圧となる条件にした。

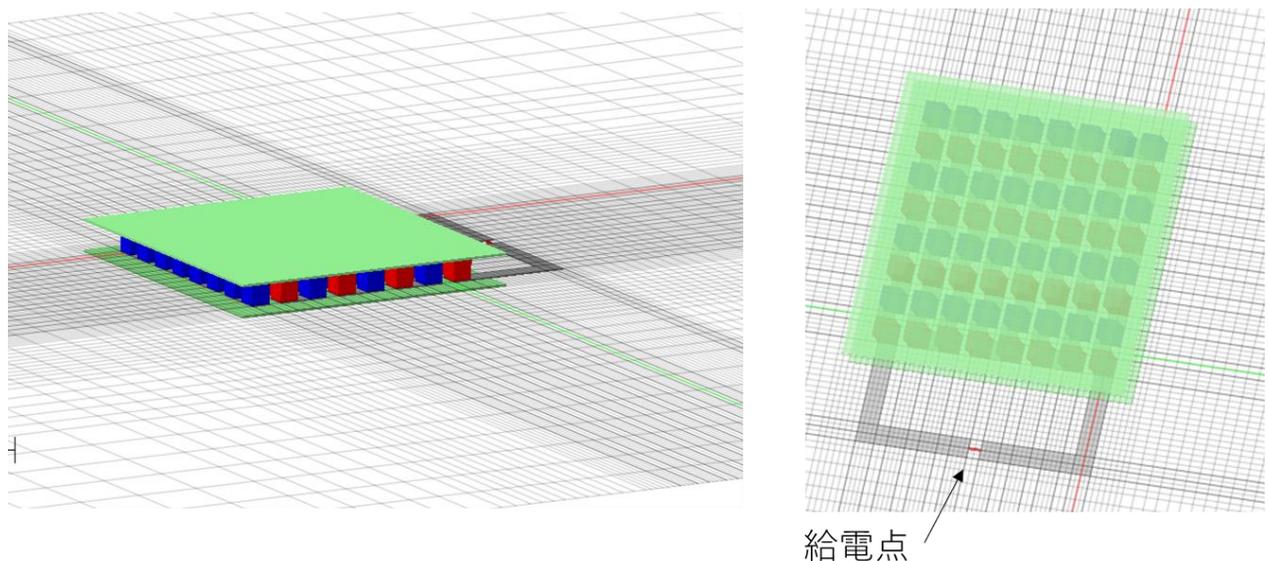
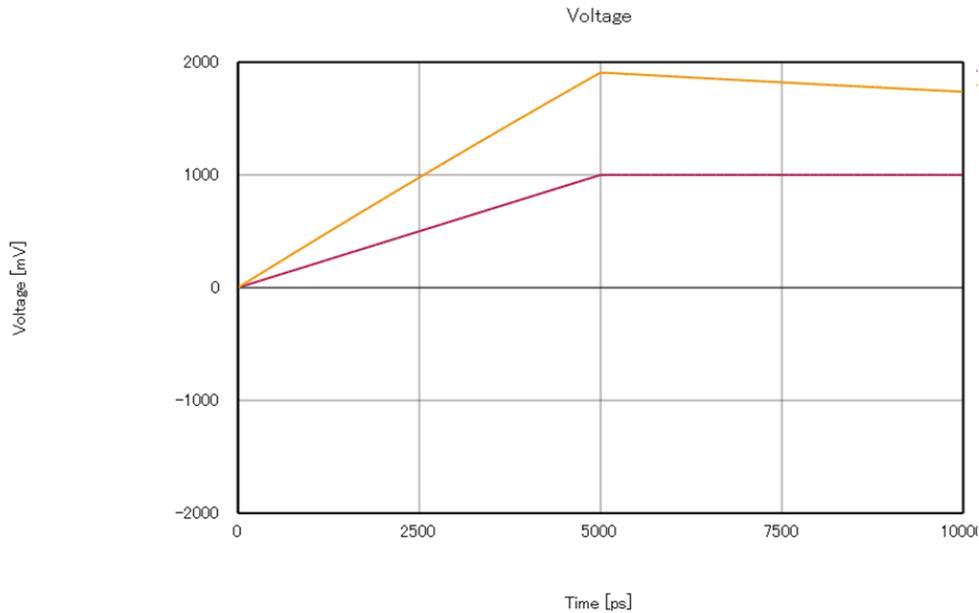


Fig. 94 電磁場解析ジオメトリ設定



**Fig. 95 給電条件**

Fig. 96 は計算されたペルチェ素子近傍の電磁界分布である。10000ps における電場を示す。給電点付近に最も大きい電磁場が生じた。給電電圧 2V の際、観察面において最大電磁強度は  $188\mu\text{V/m}$  であり、これは実験で行った電線の発生させる電場に比べてもかなり小さいと言える。

Fig. 97 は、ペルチェ素子外壁から 0.5mm の位置での 2 点における時系列電場強度を示す。位置によって電場の大きさや正負が変わることがわかるが、電場の変化はほとんど給電波形と一致した傾向を示し、電場強度自体も大きくない。電圧が一定になったのちは電場が減衰する様子がわかり、大きな電場のオーバーシュート等は発生しなかった。ペルチェ素子の内部の電子の特徴的な動き等を考慮に入れば結果が変わる可能性はあるが、スイッチング時の高周波による電場の形成だけでは強い電場は発生しないことがわかる。

Fig. 98 は電磁界のベクトルマップを示す。電気浸透流は電界の方向に流れが生じるため、一方向にのみ電界が生じるように設計する。ペルチェ素子が発生させる電磁界は方向性が定まっていない。また本実験では Y 方向に流れが発生したが、Y 方向に志向性がある電磁界は発生していない。以上の実験と計算の結果から、本実験で発生する急速な速度変動は電気浸透流である可能性は低いと考えられる。

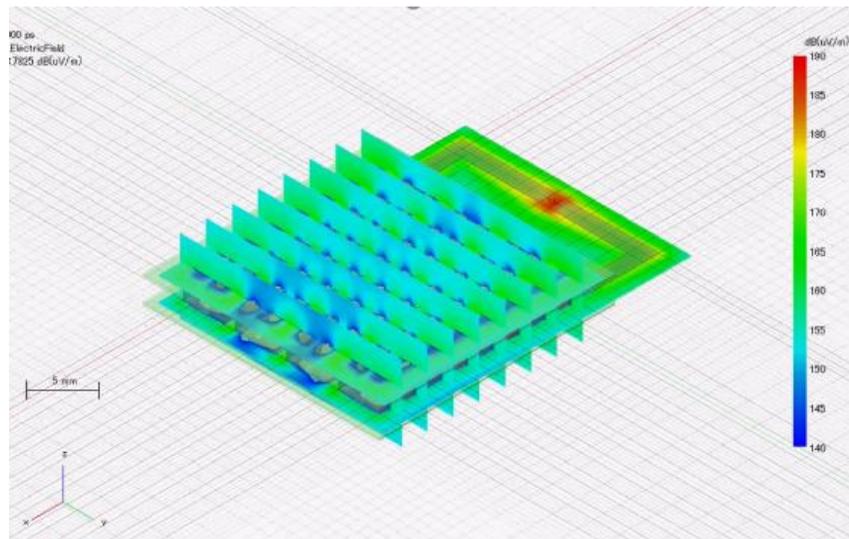


Fig. 96 ペルチェ素子近傍の電界分布

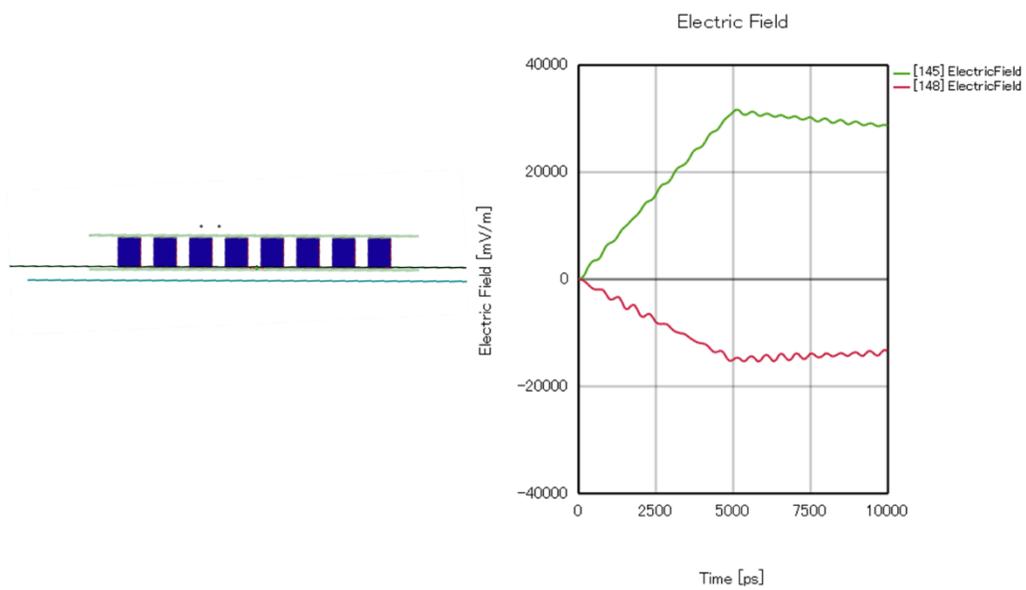


Fig. 97 ペルチェ素子近傍の時系列電場強度

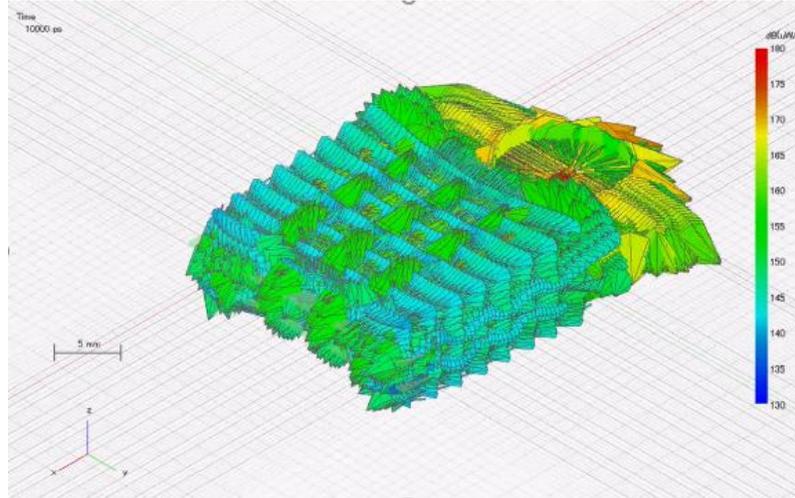


Fig. 98 電磁界ベクトルマップ

### 5.7. 圧力と変位の調査

流路内部に作用する力を計測するため、ペルチェ素子と流路の間に発生する力と、流路の変位を計測することにした。力センサーには Hilitand の FSR402 を使用した。イメージを Fig. 99 に示す。これはシート状のセンサーであり、力がかかると抵抗値が変化する。抵抗値の変化をデータロガーで計測するため、Fig. 100 に示す回路を用いて抵抗値を取得した。力センサーと  $2.2\text{k}\Omega$  の抵抗を直列に接続し、直流安定化電源で  $3.4\text{V}$  の電圧を印加した。抵抗にかかる電圧をデータロガーで計測し、この結果を用いて抵抗値を算出した。センサーはペルチェ素子と流路の間に挿入し、電源印加時にペルチェ素子によって発生する力を計測した。変位の測定にはキーエンス社製の LT9010 を使用し、電圧出力をデータロガーで記録した。データロガーでは力センサー、レーザー変位計の電圧出力、ペルチェ素子にかかる印加電圧を同時に計測した。レーザー変位計による流路の変位計測のイメージを Fig. 101 に示す。流路内部にレーザーを当て、内壁の変形を調査した。また、直接ペルチェ素子の変位についても計測した。



Fig. 99 カセンサー Hilitand FSR402

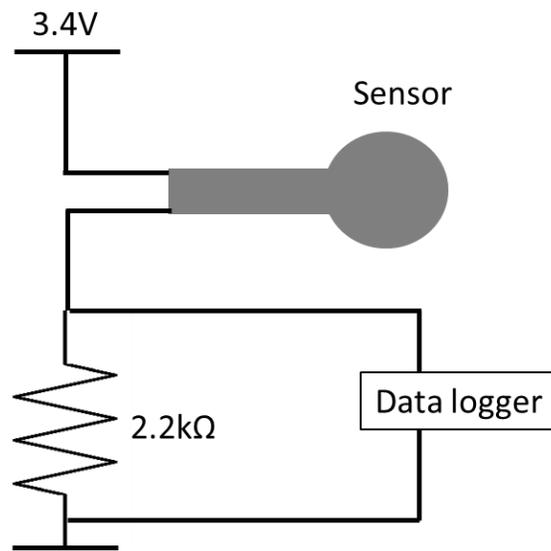
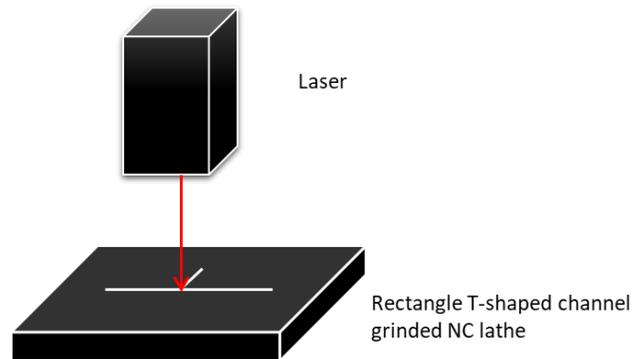


Fig. 100 抵抗値計測回路



**Fig. 101** レーザー変位計による変位計測イメージ

Fig. 102, Fig. 103 はそれぞれ同時刻の力センサーの指示値とレーザー変位計の指示値の時間変化を示す。なお、ペルチェ素子が流路に接触する面は加熱面である。赤線はペルチェ素子の印加電圧の時系列変化である。Fig. 102 より、ペルチェ素子の印加の瞬間に力センサーにも瞬間的に力が加わることがわかる。印加中の力は一定ではないことがわかる。その後、ペルチェ素子を遮断すると力が急速に減少した。Fig. 103 より、ペルチェ素子を入力すると徐々に流路壁が正の方向に変位することがわかる。遮断すると、徐々に負の方向に変位した。これは内部で熱膨張や収縮が起き、ペルチェ素子の変形することで流路壁を変形させていると考えられる。力と変位の時間変化特性は完全に一致はせず、力の方が瞬間的な応答をすることがわかる。内部流動でも、入力と遮断の瞬間では、逆方向に流れが発生した。これは入力時と遮断時で流路の変位の方向が反対になることに起因すると考えられる。Fig. 104, Fig. 105 はペルチェ素子と流路の接触面を冷却面にした際の力と変位をそれぞれ示す。

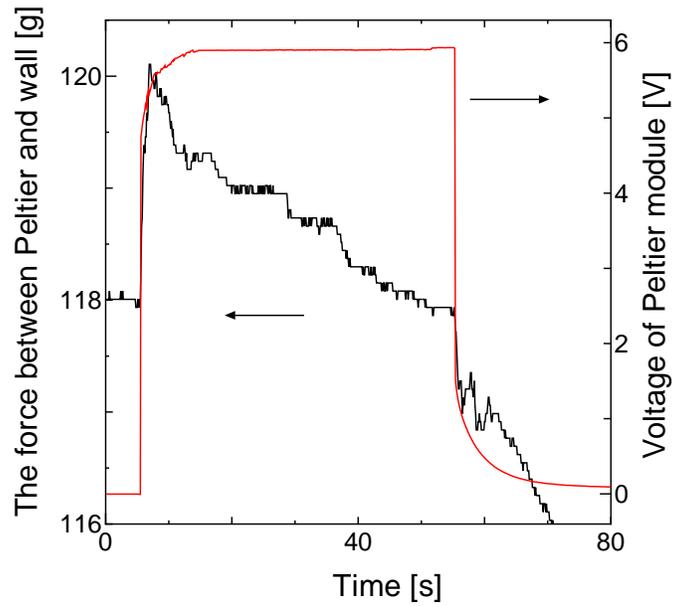


Fig. 102 カセンスターの指示値とペルチェ素子印加電圧（加熱運転）

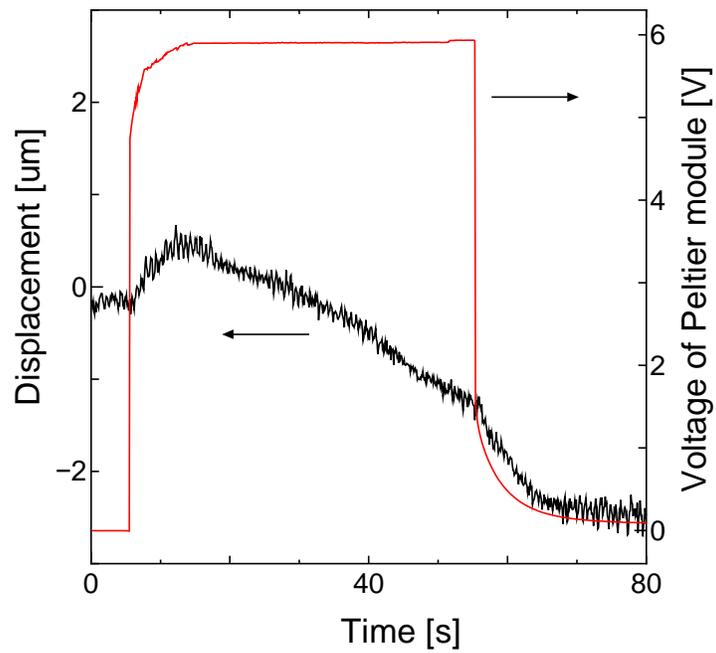


Fig. 103 レーザー変位計指示値とペルチェ素子印加電圧（加熱運転）

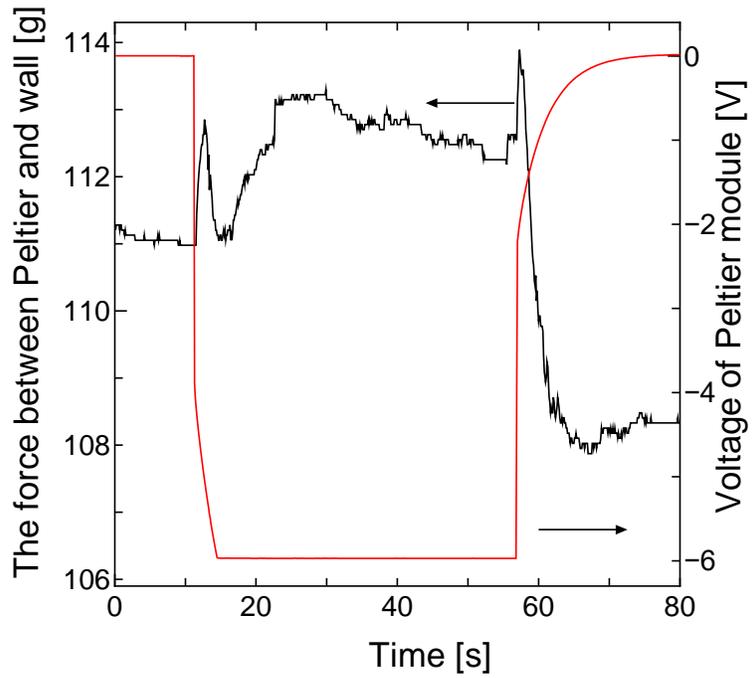


Fig. 104 カセンサーの指示値とペルチェ素子印加電圧（冷却運転）

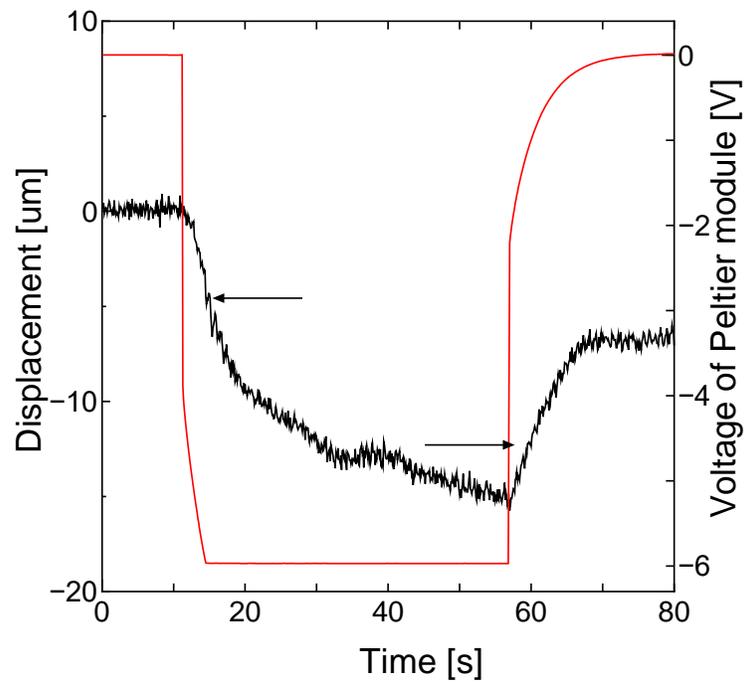


Fig. 105 レーザー変位計指示値とペルチェ素子印加電圧（冷却運転）

## 5.8. 構造物変位による流動場の数値計算

微小変位であっても内部流動が発生するか検証するため、数値計算を行う。ソフトウェアには starCCM+を用いた。計算のジオメトリを Fig. 106 に示す。流路は実験と同様に深さ 1mm 幅 1mm の矩形とした。長さは実験で用いたペルチェ素子の 1 辺の長さに相当する 20mm に設定した。ソフトのモーフィング機能を用い、Fig. 106 に橙色で示した壁面に移動境界を設定した。レーザー変位計の結果を参考にし、壁面は Z 軸方向に振幅 0.5 $\mu$ m、1Hz で振動することとした。レーザー変位計で計測された変位は空間的に一様ではなく、また正確な値を算出することが難しかった。3 点で計測された変位の時系列変化を Fig. 107 に示す。ノイズの影響がみられ、また位置による変動量の違いはあるものの、運転の瞬間に急速な変動があることがわかる。特に中央部では少なくとも 1 秒間に 1 $\mu$ m 以上の変位があったため、移動境界条件をこの値と仮定した。X=20mm の面を圧力出口とし、その他の面をすべりなし壁面とした。圧力出口については移動壁とともに境界変形する浮動設定とし、他の壁面は固定とした。すなわち移動壁はシリンダー中のピストンのように運動する。温度は考慮せず、密度一定とした。メッシュは 6 面体とし、基準サイズを 0.1mm とした。非定常計算を行い、20 サイクル、時間ステップを 0.1s として計算した。

Fig. 108 は 0.25s, 0.75s のときの圧力出口面に発生する速度分布を示す。壁面が動くことで流速が発生することがわかる。流路中央部ほど流速は大きく、壁面ほど少なくなり、これは実験結果と傾向が一致している。また、最大、最小流速は 206 $\mu$ m/s となり、実験結果で得られた  $I_{max}$ ,  $I_{min}$  の値と近いスケールであるといえる。実際の現象は正弦波ではなく、変形もより複雑だと考えられ、完全に構造物変位を模擬することはできていないが、壁面の微小な変動によって流速が発生すると考えられる。

マイクロ流路に擾乱を与える場合、レーザーを入射させるとシステムが大規模になりやすい。ダイヤフラムポンプを内蔵する場合は、事前設計や微細加工が必要となり、チップのコストが増大する。しかし微小な変位でも広範囲に与えることで内部に擾乱を与えることができるため、ペルチェ素子のような熱素子を応用すれば、外部から非接触かつ低コストでピペッティングに利用できる可能性がある。

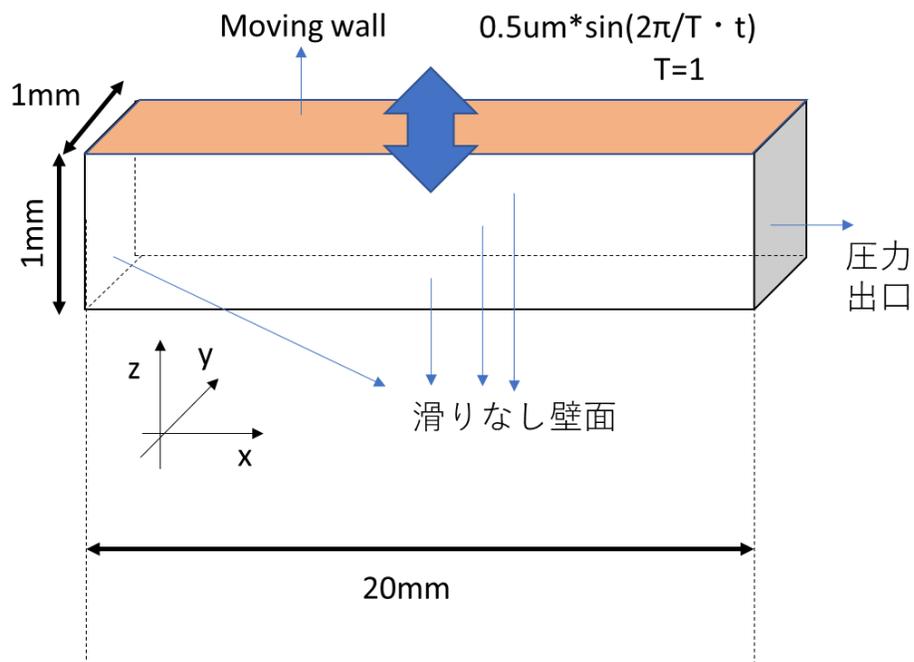


Fig. 106 壁面変動計算におけるジオメトリ

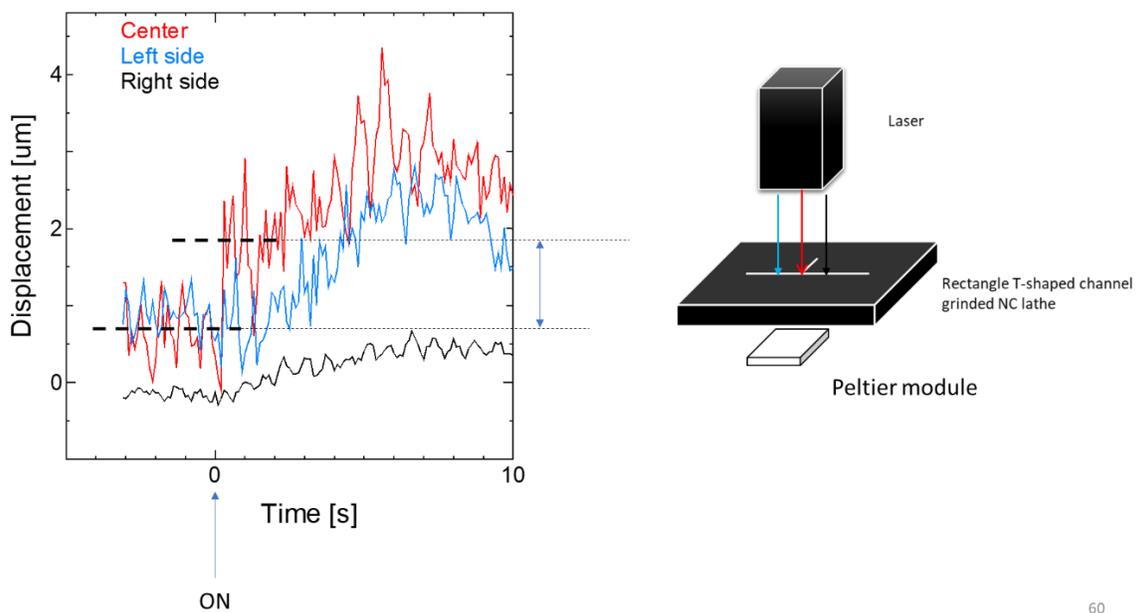


Fig. 107 場所によるペルチェ素子の変位

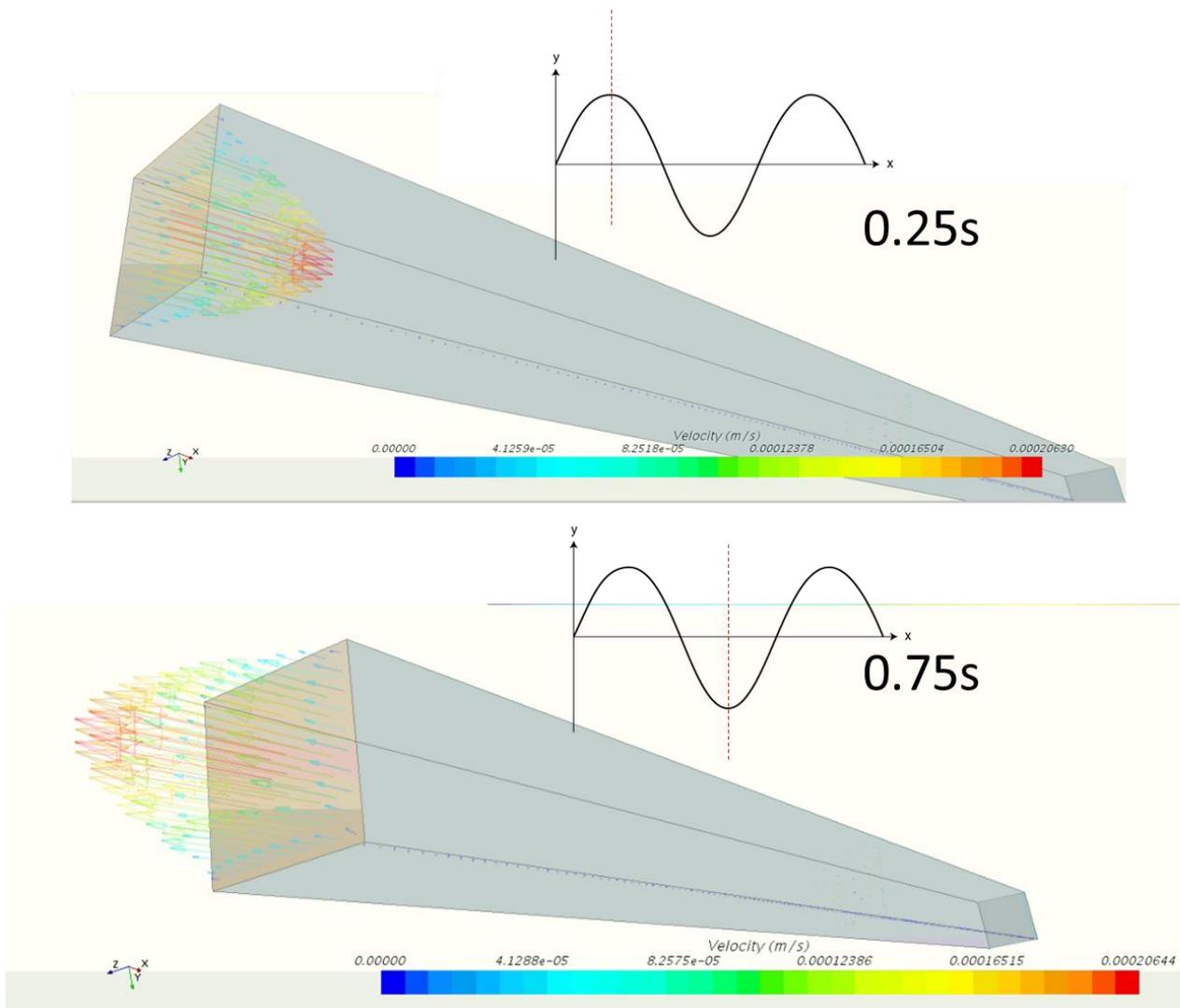


Fig. 108 構造物変位によって圧力出口に発生する流れ場

### 5.9. 本現象を用いたマイクロ流体制御技術の提案

ペルチェ素子は機械的振動が起きないことが利点であり、運転時の変位などに着目した研究はほとんど存在しない。また、バルクなスケールではほとんど無視できる変形である。しかし、マイクロスケールでは外部からのわずかな擾乱が内部流体に影響を与えるため、外部に貼り付けたペルチェ素子のわずかな変異が内部の流体を動かしたと考えられる。また、内部に熱が伝導するよりも早く圧力変動が起きることがわかった。

マイクロピペッティングやソーティング、アクチュエーターでは、非常に小さな圧電素子を変形可能なチャンバーに取り付けることで内部作動液を駆動させる。本研究の場合、流路に対して大きなペルチェ素子を外部に取り付けることで、わずかな変形が流れの擾乱を産む程度の体積変化になったと考えられる。マイクロ流動制御をする場合、モーターや微細加工を用いずに変形を利用できることはシステムの簡易化や低コスト下、安定性に重要であると考えられる。チップそのものにアクチュエーター等をあらかじめ仕込む必要がなくなり、容易にシステムの後付けができる。マクロスケールの素子を用いて、マイクロ流動制御をすることで、より簡易なマイクロ流動制御が実現できると考えられる。

#### 5.10. 本章のまとめ

本章では以下のことが明らかになった

- ・ペルチェ素子を駆動する際、印加の瞬間にペルチェ素子は変形する。
- ・流路に固定したペルチェ素子を運転すると、内部の流体に擾乱が発生する。
- ・ピエゾアクチュエータやマイクロソーティング技術に応用できる可能性がある。

## 6. 結論

本研究の目的に対し、得られた結論を以下にまとめる。

- 3次元的な微小スケール熱流動場の特性を検証する
  - マイクロスケールの熱対流の特性について実験と計算を行った、得られた温度場・速度場はよく整合した。
  - サブミリスケールは流路体積に対する自然対流の影響が相対的に大きく、もっとも温度差を混合に有効活用できるスケールであることがわかった。
  
- 熱制御によるマイクロミキシングの有効性を検証する
  - 金属流路を用いることで、流路内部に生じる温度差を強くすることができた。
  - 1辺が4mmの矩形断面を持つ流路に、スパン方向と垂直に1.18°C/mmの温度差を16mmの範囲で与え、流速50μm/sで運転したところ、混合距離3.56mmを達成した。これはほとんど同じ拡散係数の液体についてStroockらが達成している混合距離より2倍以上短いものである。温度差を与えればより混合の促進が可能である。
  
- マイクロミキサーとしての適応範囲、特性を明らかにする
  - 動粘度に比例して混合距離が必要である。流速が大きいほど混合距離が必要である。流路断面の一辺の長さが4mm前後のとき最も混合効率が高い。自然対流による混合であることから、流体密度の温度依存性のある流体に適応できる。
  
- ペルチェ素子印加時に発生する急速な速度変動について
  - ペルチェ素子の入力と遮断の瞬間に内部液体が擾乱し、この擾乱強度は入力電力に相関があった。

- ▶ ペルチェ素子は運転直後に素子に変形することがわかった。素子をチャンネルに固定することで流路が変形し、流れに擾乱を与えることがわかった。

以上の結果より、ペルチェ素子を用いた非接触流体混合法を開発し、この有効性を示した。

## 参考文献

1. Ho C.-M., Tai Y.-C., Micro-Electro-Mechanical-System (MEMS) and fluid flows, *Annu Rev Fluid Mech*, 30:579–612 (1998)
2. Lee S.J., Lee S.Y., Micro total analysis system ( $\mu$ -TAS) in biotechnology, *Appl Microbiol Biotechnol*, 64:289–299 (2004)
3. Qu W., Mudawar I., Flow boiling heat transfer in two-phase micro-channel heat sinks-I. Experimental investigation and assessment of correlation methods, *Int J Heat Mass Transf*, 46:2755–2771 (2003)
4. Whitesides G.M., The origins and the future of microfluidics, *Nature*, 442:368–373 (2006)
5. Meinhart C., Wereley S., Santiago J., PIV measurements of a microchannel flow, *Exp Fluids*, 27: 414-419 (1999)
6. Ilievski F., Mazzeo A.D., Shepherd R.F., et al, Soft Robotics for Chemists, *Angewandte Chemie International Edition*, 50(8): 1890-5 (2011)
7. Squires T.M., Quake S.R., Microfluidics Fluid physics at the nanoliter scale, *Reviews of Modern Physics*, 77(3): 977- (2005)
8. 山田崇, 気液自由界面上に生じるマランゴニ対流を用いた マイクロ混合流の生成, 芝浦工業大学博士論文 (2014)
9. 丸山茂夫編, マイクロ・ナノ熱流体ハンドブック, エヌ・ティー・エス (2006)
10. 元祐昌廣, 嶋川純, 本阿弥眞治, 光誘起局所粘性分布下におけるマイクロ流動構造の解明(流体力学, 流体機械), *日本機械学会論文集 B 編*, 76:588–594 (2010)
11. Nguyen N.-T., Wu Z., Micromixers—a review, *J. Micromechanics Microengineering*, 15: R1–R16 (2004)
12. Bottausci F., Mezić I., Meinhart C.D., Cardonne C., Mixing in the shear superposition micromixer: three-dimensional analysis, *Philos Trans A Math Phys Eng Sci*, 362:1001–1018 (2004)
13. Niu X., Lee Y.-K., Efficient spatial-temporal chaotic mixing in microchannels, *J. Micromechanics Microengineering*, 12(3): 454- (2003)
14. Lu L., Ryu K.S., Liu C., A Novel Microstirrer and Arrays for Microfluidic Mixing, *Micro Total Analysis System*, 11: 28–30 (2001)
15. Tsouris C., Culbertson C.T., DePaoli D.W., et al, Electrohydrodynamic mixing in microchannels, *AIChE Journal*, 49(8): 2181–2186 (2003)

16. Moctar A.O., Aubry N., Batton J., Electro-hydrodynamic micro-fluidic mixer. *Lab Chip*, 3: 273–280 (2003)
17. Ross D., Gaitan M., Locascio L.E., Temperature measurement in microfluidic systems using a temperature-dependent fluorescent dye, *Anal Chem*, 73: 4117–23 (2001)
18. Ebrahimi S., Hasanzadeh-Barforoushi A., Nejat A., Kowsary F., Numerical study of mixing and heat transfer in mixed electroosmotic/pressure driven flow through T-shaped microchannels, *Int J Heat Mass Transf*, 75:565–580 (2014)
19. Ichiyanagi M., Sasaki S., Sato Y., Hishida K., Micro-PIV/LIF measurements on electrokinetically-driven flow in surface modified microchannels, *J Micromechanics Microengineering*, 19: 045021 (2009)
20. Bau H.H., Zhong J., Yi M., A minute magneto hydro dynamic (MHD) mixer. *Sensors Actuators, B Chem*, 79:207–215 (2001)
21. Tsai M.C., Leu T.S., The study of flexible plate wave device for micro pumping system., *Proc 2nd IEEE Int Conf Nano/Micro Eng Mol Syst IEEE NEMS 2007*, 452–457 (2007)
22. Yasuda K., Non-destructive, non-contact handling method for biomaterials in micro-chamber by ultrasound. *Sensors Actuators B Chem*, 64:128–135 (2000)
23. Bezagu M., Arseniyadis S., Cossy J., et al, A fast and switchable microfluidic mixer based on ultrasound-induced vaporization of perfluorocarbon. *Lab Chip*, 15: 2025–9 (2015)
24. Tang S.-Y., Sivan V., Petersen P., et al, Liquid Metal Actuator for Inducing Chaotic Advection, *Adv Funct Mater*, 24:5851–5858 (2014)
25. Xu B., Wong T.N., Nguyen N.-T., Experimental and numerical investigation of thermal chaotic mixing in a T-shaped microchannel, *Heat Mass Transf*, 47:1331–1339 (2011)
26. Stroock A.D., Dertinger S.K.W., Ajdari A., et al, Chaotic mixer for microchannels, *Science* 295:647–51 (2002)
27. Jackman R.J., Floyd T.M., Ghodssi R., et al, Microfluidic systems with on-line UV detection fabricated in photodefinable epoxy, *J Micromechanics Microengineering*, 11:263–269 (2001)
28. Koch M., Witt H., Evans G.R., Brunnschweiler A., Improved Characterisation Technique for Micromixers, *J Micromechanics Microengineering*, 9(2): 156- (1999)
29. Gray B.L., Jaeggi D., Mourlas N.J., et al, Novel interconnection technologies for integrated microfluidic systems, *Sensors Actuators, A Phys*, 77:57–65 (1999)
30. Fan Y.-J., Sheen H.-J., Hsu C.-J., et al, A quantitative immunosensing technique based on the measurement of nanobeads' Brownian motion, *Biosens Bioelectron*, 25: 688–94 (2009)
31. He B., Burke B.J., Zhang X., et al, A picoliter-volume mixer for microfluidic analytical systems, *Anal Chem*, 73: 1942–1947 (2001)

32. Miyake R., Tsuzuki K., Takagi T., Imai K., A highly sensitive and small flow-type chemical analysis system with integrated absorptiometric micro-flowcell, *Proceedings IEEE The Tenth Annual International Workshop on Micro Electro Mechanical Systems. An Investigation of Micro Structures, Sensors, Actuators, Machines and Robots*, 102–107 (1997)
33. Fu L.-M., Fang W.-C., Hou H.-H., et al, Rapid vortex microfluidic mixer utilizing double-heart chamber, *Chem Eng J*, 249: 246–251 (2014)
34. Weaver W.M., Tseng P., Kunze A., et al, Advances in high-throughput single-cell microtechnologies. *Curr Opin Biotechnol* 25:114–123 (2014)
35. Shen Y., Yalikun Y., Tanaka Y., Recent advances in microfluidic cell sorting systems, *Sensors Actuators B Chem*, 282:268–281 (2019)
36. Zhang Y.S., Yue K., Aleman J., et al, 3D Bioprinting for Tissue and Organ Fabrication, *Ann Biomed Eng*, 45:148–163 (2017)
37. Shi J., Huang H., Stratton Z., et al, Continuous particle separation in a microfluidic channel via standing surface acoustic waves (SSAW), *Lab Chip*, 9:3354 (2009)
38. Qi X., Carberry D.M., Cai C., et al, Optical sorting and cultivation of denitrifying anaerobic methane oxidation archaea, *Biomed Opt Express*, 8:934 (2017)
39. Cheng Z., Wu X., Cheng J., Liu P., Microfluidic fluorescence-activated cell sorting ( $\mu$ FACS) chip with integrated piezoelectric actuators for low-cost mammalian cell enrichment, *Microfluid Nanofluidics*, 21:9 (2017)
40. Blue Martin A., Wu W.-T., Kameneva M. V., Antaki J.F., Development of a High-Throughput Magnetic Separation Device for Malaria-Infected Erythrocytes, *Ann Biomed Eng*, 45:2888–2898 (2017)
41. Xu B., Wong T.N., Nguyen N.-T., et al, Thermal mixing of two miscible fluids in a T-shaped microchannel, *Biomicrofluidics*, 4: 44102 (2010)
42. Gurevich Y.G., Velazquez-P. J.E., Peltier Effect in Semiconductors, *Wiley Encycl Electr Electron Eng*, 1–21 (2014)
43. 中山泰喜, 小林敏雄 編, PIV と画像解析技術, 朝倉書店 (2014)
44. Particle Image Velocimetry Measurement Principles | Learn More About PIV Measurement Principles for Velocity Vector Measurement - Dantec Dynamics, Website: <https://www.dantecdynamics.com/solutions-applications/solutions/fluid-mechanics/particle-image-velocimetry-piv/measurement-principles-of-piv/> (2020)
45. Search H., Journals C., Contact A., et al, 3D PTV and its application on Lagrangian motion, *Measurement Science and Technology*, 8(12) 1539- (1997)
46. Santiago J.G., Wereley S.T., Meinhart C.D., et al, A particle image velocimetry system for microfluidics, *Exp Fluids*, 25: 316–319 (1998)

47. Crimaldi J.P., Planar laser induced fluorescence in aqueous flows, *Exp Fluids*, 44: 851–863 (2008)
48. Hu H., Koochesfahani M.M., Molecular tagging velocimetry and thermometry and its application to the wake of a heated circular cylinder, *Meas Sci Technol*, 17:1269–1281 (2006)
49. Deprédurand V., Miron P., Labergue A., et al, A temperature-sensitive tracer suitable for two-colour laser-induced fluorescence thermometry applied to evaporating fuel droplets, *Meas Sci Technol*, 19: 105403 (2008)
50. Kubin R.F., Fletcher A. N., Fluorescence quantum yields of some rhodamine dyes, *J Lumin*, 27(4): 455–462 (1982)
51. Setiawan D., Kazaryan A., Martoprawiro M.A. F.M., A first principles study of fluorescence quenching in rhodamine B dimers: how can quenching occur in dimeric species?, *Phys Chem Chem Phys*, 12(37): 11238-44 (2010)
52. Liu R.H., Stremler M.A., Sharp K.V., et al, Passive mixing in a three-dimensional serpentine microchannel, *J Microelectromechanical Syst*, 9: 190–197 (2000)
53. Hong C.-C., Choi J.-W., Ahn C.H., A novel in-plane passive microfluidic mixer with modified Tesla structures, *Lab Chip*, 4:109 (2004)
54. Wang W., Zhao S., Shao T., et al, Visualization of micro-scale mixing in miscible liquids using  $\mu$ -LIF technique and drug nano-particle preparation in T-shaped micro-channels, *Chem Eng J*, 192: 252–261 (2012)
55. Alam A., Afzal A., Kim K.-Y., Mixing performance of a planar micromixer with circular obstructions in a curved microchannel, *Chem Eng Res Des*, 92: 423–434 (2014)
56. Wong S.H., Bryant P., Ward M., Wharton C., Investigation of mixing in a cross-shaped micromixer with static mixing elements for reaction kinetics studies, *Sensors and Actuators, B: Chemical*, 95: 414-424 (2003)
57. Wong S.H., Ward M.C.L., Wharton C.W., Micro T-mixer as a rapid mixing micromixer, *Sensors Actuators, B Chem*, 100: 359–379 (2004)

## 図表目次

Fig. 1	$\mu$ -TAS による DNA 分析のイメージ[7]	5
Fig. 2	マイクロミキサーの分類[11]	10
Fig. 3	Bottausci らによるアクティブ制御マイクロミキサーの流路[12]	12
Fig. 4	Lu らによるマイクロステーター[14]	12
Fig. 5	PFC の蒸発を用いたマイクロミキサー[23]	15
Fig. 6	ガリNSTAN を利用したマイクロミキサーの駆動部[24]	16
Fig. 7	加熱銅円柱による混合[25]	17
Fig. 8	Stroock らによるパッシブ制御マイクロミキサーの流路[26]	19
Fig. 9	パッシブ制御マイクロミキサー カオス混合を利用する流路[11]	19
Fig. 10	パッシブ制御マイクロミキサーの例 Parallel lamination micromixer [11]	20
Fig. 11	パッシブ制御マイクロミキサーの例 serial 型 [11]	20
Fig. 12	Miyake らによるノズルアレイ型パッシブマイクロミキサー[32]	20
Fig. 13	ダブルハート型のリアクターを持つパッシブ制御マイクロミキサー[33]	21
Fig. 14	Shen らによるマイクロ流体ソーティング技術の分類[35]	22
Fig. 15	Qu らによるレーザーを利用したマイクロピンセット[38]	24
Fig. 16	Cheng らによる圧電素子によるソーティング[39]	25
Fig. 17	局所加熱によって温度場と速度場が変動している様子[10]	26
Fig. 18	本論文の流れ	30
Fig. 19	流路掘削板の図面	32
Fig. 20	流路蓋図面	33
Fig. 21	流路の構成	34
Fig. 22	流路の写真	34
Fig. 23	Peltier 効果のモデル図[42]	36
Fig. 24	実験方法のモデル図	38
Fig. 25	撮影のタイミングチャート	38
Fig. 26	PIV・LIF の計測イメージ[44]	41
Fig. 27	短い間隔で撮影された検査領域における画像のイメージ	42
Fig. 28	フォトダイオードで計測した水銀灯強度の時系列変化	46
Fig. 29	あるエリアにおける LIF 取得データ：輝度比の時系列変化	46

Fig. 30	時系列輝度比変化の周波数成分 .....	47
Fig. 31	LIF の校正関数取得例 .....	49
Fig. 32	明滅ノイズをキャンセルする LDS の塗布位置 .....	50
Fig. 33	LIF 補正結果 .....	50
Fig. 34	熱電対によるチャンネル構造温度の水平方向計測位置 .....	52
Fig. 35	熱電対によるチャンネル構造温度の垂直方向計測位置 .....	52
Fig. 36	熱電対計測による, 電圧条件 C6H4 の際のアリミ側の温度変化 .....	53
Fig. 37	熱電対計測による, 電圧条件 C6H4 の際のスライドガラス側の温度変化 .....	53
Fig. 38	熱電対計測による, 電圧条件 C6H6 の際のアリミ側の温度変化 .....	54
Fig. 39	熱電対計測による, 電圧条件 C6H6 の際のスライドガラス側の温度 .....	54
Fig. 40	本研究で用いた RhodaminB の温度感度 .....	56
Fig. 41	LIF で計測したペルチェ素子の運転によって内部に生じる温度場 .....	57
Fig. 42	水平方向の R 値分布の断面比較 .....	58
Fig. 43	得られた PIV マップの例 .....	60
Fig. 44	3 点における時系列速度変動 .....	62
Fig. 45	ペルチェ素子の運転中の流路下流部に発生する流れの様子 .....	64
Fig. 46	チャンネルの位置関係 .....	66
Fig. 47	鉛直軸における速度分布 .....	67
Fig. 48	$v_D$ の定義 .....	68
Fig. 49	各電力, 流量における $v_D$ の値 .....	68
Fig. 50	チャンネル No.2, 細い流路における $v_D$ の値 .....	70
Fig. 51	チャンネル No.3, 縮流なし流路における $v_D$ の値 .....	70
Fig. 52	チャンネル No. 4 浅い流路における $v_D$ の値 .....	71
Fig. 53	電圧上昇速度と $v_D$ の関係 .....	72
Fig. 54	計算のジオメトリ設定 .....	77
Fig. 55	温度境界条件の与え方 (a) 温度境界条件を与える面と構造物とチャンネルの関係, (b) 温度境界条件の可視化 .....	77
Fig. 56	本研究で切ったメッシュ .....	78
Fig. 57	計算結果と実験の比較 .....	79
Fig. 58	流線の描く軌跡 (a)XY-Plane, (b)XZ-Plane .....	81

Fig. 59 旋回流による速度分布 (a)XZ 面における二次元速度分布, (b)各位置における 1 次元速度分布 .....	81
Fig. 60 $I_s$ と温度差の関係 .....	82
Fig. 61 動粘度に乗した係数 $k$ と $I_s$ の関係 .....	83
Fig. 62 $I_s$ の流入流速依存性 .....	84
Fig. 63 チャンネルの大きさと $I_s$ の関係 .....	85
Fig. 64 $I_s$ と Ra 数の関係 .....	87
Fig. 65 設置姿勢の設定 (a)水平設置, (b)垂直設置 .....	88
Fig. 66 設置姿勢による Y=20mm 断面での物質質量濃度分布 .....	88
Fig. 67 流れの不安定性を検証するための温度境界条件 .....	89
Fig. 68 チャンネル内部につく最大温度差と Y 位置の関係 .....	90
Fig. 69 チャンネル内部温度と旋回強度 $I_s$ の関係 .....	90
Fig. 70 温度分布の数値計算と実験結果の比較 .....	92
Fig. 71 チャンネルの大きさによる温度分布の違い .....	93
Fig. 72 構造物とチャンネル内部につく温度分布 (Y=20mm) .....	93
Fig. 73 濃度分布の計算結果. Fig. 73L=1mm,Z=0.5mm . .....	96
Fig. 74 温度差と混合距離による混合達成率 $\sigma$ の変化 .....	96
Fig. 75 $dT$ と $y_{90}$ の関係 .....	97
Fig. 76 L=0.25, 1mm による $\sigma$ の変化の比較 .....	97
Fig. 77 チャンネルサイズ L による $y_{90}$ の比較 .....	98
Fig. 78 チャンネルサイズ L と無次元混合達成距離 .....	98
Fig. 79 Ra 数と無次元混合距離 $y_{90}/L$ の関係 .....	99
Fig. 80 先行研究におけるマイクロミキサーとの比較[11] .....	102
Fig. 81 $I_{max}, I_{min}$ の定義 .....	104
Fig. 82 Plane2 における電圧と $I_{max}, I_{min}$ の関係 .....	106
Fig. 83 Plane0,Plane1 における電圧と $I_{max}, I_{min}$ の関係 .....	107
Fig. 84 Plane3,Plane4 における電圧と $I_{max}, I_{min}$ の関係 .....	108
Fig. 85 ペルチェ素子入力・遮断直後の流動 .....	112
Fig. 86 電圧上昇にかかる時間を変化させたときの速度変動 .....	114
Fig. 87 電圧上昇にかかった時間と $I_{min}$ の関係 .....	115

Fig. 88	$t_1$ と $t_2$ の値と電圧上昇時間の関係	115
Fig. 89	0.5,0.5,1(深さを変えず幅を狭くした流路)流路における $I_{max}$ , $I_{min}$ の値と電力の関係	117
Fig. 90	0.5,1,1(縮流のない流路)流路における $I_{max}$ , $I_{min}$ の値と電力の関係	118
Fig. 91	1,1,0.5(幅を変えずに浅くした流路)流路における $I_{max}$ , $I_{min}$ の値と電力の関係	119
Fig. 92	ペルチェ素子駆動時の電流と電圧	121
Fig. 93	導線による電場発生方法	122
Fig. 94	電磁場解析ジオメトリ設定	124
Fig. 95	給電条件	125
Fig. 96	ペルチェ素子近傍の電界分布	126
Fig. 97	ペルチェ素子近傍の時系列電場強度	126
Fig. 98	電磁界ベクトルマップ	127
Fig. 99	力センサー Hilitand FSR402	128
Fig. 100	抵抗値計測回路	128
Fig. 101	レーザー変位計による変位計測イメージ	129
Fig. 102	力センサーの指示値とペルチェ素子印加電圧(加熱運転)	130
Fig. 103	レーザー変位計指示値とペルチェ素子印加電圧(加熱運転)	130
Fig. 104	力センサーの指示値とペルチェ素子印加電圧(冷却運転)	131
Fig. 105	レーザー変位計指示値とペルチェ素子印加電圧(冷却運転)	131
Fig. 106	壁面変動計算におけるジオメトリ	133
Fig. 107	場所によるペルチェ素子の変位	133
Fig. 108	構造物変位によって圧力出口に発生する流れ場	134

## 謝辞

本研究を遂行し、学位論文をまとめるにあたり、多くのご支援とご指導、お取り図りを賜りました、東京大学大学院新領域創成科学研究科人間環境学専攻の飛原英治教授、宗像鉄雄教授に深く感謝いたします。2018年後半～2019年度に飛原先生と宗像先生のご指導を頂きました。ご多忙であるにも拘らず、ミーティングの際はいつも時間をかけて真剣に向き合ってくださいました。常に高い視点から見通す言葉を頂き、非常に心強く感銘を受けておりました。また、具体的な博士論文の中身だけでなく、研究全般や大学の仕事についてもお話頂き、とても嬉しかったです。私が能力を着け、博士取得後の為にもなるようご対応頂いていることを言動の端々から感じ、先生方からやるべきことを示していただくと元気が出てきて、頑張ることができました。お忙しいにも拘わらず、私の居住地のことを鑑みて本郷でミーティングを開催していただくなど、お心遣い頂きました。本論文で数値計算をすることを勧めて下さったことで、現象をより深く理解することができました。これから研究をしていくうえで重要な基礎を身に付けさせて頂くことができました。また、飛原先生には計算用のPCや数値解析ソフトウェア、英文校正費用をご支援して頂きました。ここにはとても書ききれないほど、沢山のご指導を頂き、ご迷惑やご面倒をおかけしたと思いますが、懇切親身にご対応頂き、大変恐縮いたしております。博士の最後の1年強を飛原先生と宗像先生にご指導していただけたことは得難い財産であると感じております。ここに深く感謝し、頂きました経験を社会に還元できるよう精進いたします所存です。

2013～2016年度に東京大学大学院と産業技術総合研究所の連携大学院制度であった低炭素工学システム研究室におきましてご指導を賜りました染矢聡先生に深く感謝いたします。学部時代からインターンシップ、修士論文のご指導もして頂き、長くお世話になりました。種々の高度な可視化計測技術について教えていただき、博士論文ではテーマの選定や実験装置の構築等のあらゆるご指導を賜りました。私が研究者になりたいと思いつつも、懸念をしている際には、この道に進むことを応援してくださいました。現在研究職に就き、可視化手法を用いて種々の研究に取り組んでいるのは染矢先生のご指導のおかげです。審査委員として多くのご助言を頂きました。東京大学新領域創成科学研究科人間環境学専攻の奥田 洋司教授、陳昱教授、東京大学工学研究科原子力国際専攻の岡本孝司教授、産業技術総合研究所熱利用グループの稲田孝明先生に深く感謝いたします。お忙しい中にもかかわらず、親身にご指導を頂きました。東京大学の党超鋺先生からは、貴重なレーザー変位計をお貸しいただきました。ここに深く感謝いたします。

現在勤める青山学院大学理工学部機械創造工学科で研究室の上司である麓耕二教授は、いつも暖かく励ましてくださり、研究結果についていつも興味深く聞いてくださいました。また、尊重して裁量を与えてくださり、私にかかる負担を心配して下さり、私が良い方向に進み、楽しく研究に取り組めるようお心遣いしてくださいました。青山学院大学で博士論文と大学の研究に充実して取り

組むことができました。ここに深く感謝いたします。同学科の横田和彦教授には、非定常の電気浸透流の理論解析方法等についてご教授頂き、親身にお教えくださりとても勉強になりました。同学科の教職員の皆様、学生の皆様からはいつも学位の心配をしていただき、楽しい飲み会を開催して下さいっては励ましていただきました。着任当初は自力で研究を立ち上げたり、論文を書ける自信があまりありませんでしたが、複数の先生方から日々エネルギーを頂き、書くことができたと感じています。そして、少しずつ自信をつけることができました。青学の明るく暖かい環境で、心身健康に博士論文と仕事に取り組み、充実した毎日を送ることができました。ここに深く感謝致します。

流体解析ソフト CHAM Japan サポートチームの担当者様には、数値解析ソフトウェアの使用方法について、私の愚かな質問にもいつも丁寧に迅速にご対応頂きました。電磁界解析ソフトの Poynting の Fujitsu のサポートの方々には、商品問い合わせの直後から迅速にご親身にご対応頂きました。マイクロチャンネルの機械加工につきましては、藤和製作所の斎藤様、青山学院大学の機械工作室の方々にお世話になりました。青山学院大学電気電子工学科の橋本修教授、須賀良介助教には電磁界解析についてご親身に相談に乗ってくださいました。大学の先輩で、現横浜国立大学の比嘉紘士助教には、私がどん底にいる際に、ポジティブで誠実な言葉で、研究の道に進むことを応援してくださいました。当時研究者への道を応援してくれた友人はほぼ他におらず、比嘉先生がいなければ心が折れていたかもしれないと感じています。ここに深く感謝いたします。

進学前に、博士課程は苦しいものだと沢山のの人に言われました。私は研究者になることに長く憧れがあり、その道の苦しみを知っている人がむしろ羨ましいと思っていました。進学が叶った時は希望にあふれて、どんな苦しい事があっても自分は大丈夫だと思っていました。しかし実際の博士課程は想像を遥か斜め上に超えた苦しいもので、信念がすべて崩れるような体験でした。それでも研究を手放さずに済み、今穏やかな気持ちで研究に携われていることがとても幸せです。自分の苦しみは自分の愚かさゆえの無意味なものなのではないかと当時悩んでいましたが、今では糧であったと感じています。多くの方々に励まし、助けて頂き、幸運に恵まれたお陰と感じております。自らも教員になり、社会の流れや色々な組織、歴史の積み重ねなど、無数の人たちに支えられて生かされていること、沢山の方々に迷惑をかけながら長い目で見て育てて頂いたことを実感するようになりました。私が社会から受けてきた恩恵に比べて、自分一人の力が、とても小さいことを実感しています。終わりのない努力が必要かと思いますが、私と与えられた幸せを、社会に恩返しできるような、良い研究者、教員になるべく、それが何かを考えながら、努力する所存です。

研究費では日本学術振興会の特別研究員奨励費のご支援を賜りました。

最後に、私をいつも心配し、最後まで様々な応援して下さった両親、妹、愛犬、常に導いて下さった神様に、深い感謝の意を表して謝辞といたします。