

# 表面濡れ性パターンを駆動力とするフラクタル開放型マイクロ流路における、液滴輸送・収集の構造機能相関の系統的理解

甲斐 洋行

東京理科大学 理学部第一部応用物理学科

## 1. はじめに

微小水滴を基板表面で輸送・操作する開放型マイクロ流路 (open microfluidic channels) の研究が行われている[1,2]。通常のマイクロ流路においてはポンプなどの外部圧力によって管状構造の内部を流体が移動するのに対し、開放型マイクロ流路では、濡れ性の高い部分の幅に勾配をもたせることで、液滴の毛管力の不釣り合いを生じ、水滴が一方方向に輸送される。筆者はこれまでに、水滴を一方方向輸送する開放型マイクロ流路を階層的なフラクタル分岐を有する「空間充填木」構造で基板上的の三角形の領域に敷き詰めた「フラクタル開放型マイクロ流路」(以下「フラクタル流路」)を開発し、液滴の輸送・融合を階層的に繰り返すことで高効率 (1秒以内、吹き付けた水滴総量の7割以上) に分岐の根元 (焦点) に水滴を収集できることを示した (図1) [3]。フラクタル流路は少数の形状パラメータ (充填領域、枝分かれ世代数、開き角など) から複雑な構造が一意に定まる。また、世代数を増加させると枝分かれの総数が指数関数的に増加して平面内が密に充填され効率的な水滴収集が可能になる。筆者らは、さまざまな流路構造を有するフラクタル開放型流路を設計した[4,5]。加えて、一般に効率的な輸送が困難な表面張力の小さい油滴の輸送・収集も実証した[6]。さらに流路上における液滴の融合を利用した物質合成といった研究も行っている[7]。

フラクタル開放型流路における液滴の輸送・収集挙動は、実際に流路デバイスを作製して液滴を吹き付けることによって実験的に検証しているが、数値解析によってさまざまなパラメータが与

える影響を系統的に理解することができれば、最適な流路構造の設計や液滴導入方法に関する指針が得られると期待される。

そこで本研究では、表面濡れ性を液滴輸送の駆動力とする開放型流路およびフラクタル流路における、流路の形状や液滴の物性などが液滴の輸送・収集に与える影響を、数値流体力学を用いて系統的に理解することを目指した。

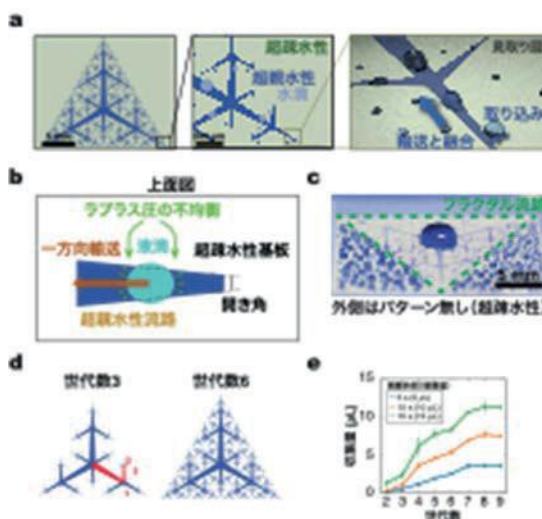


図1：フラクタル開放型流路 (a) 構造と輸送の概念図 (b) 親水性流路における水滴の一方輸送(c) フラクタル流路に青い水滴を吹き付けた直後の様子 (d) 世代数 (分岐の繰り返し回数) の変化 (e) 世代数による水滴収集量の変化。世代数の増大で水滴収集効率が向上する。

## 2. 数値解析の手法

大阪大学サイバーメディアセンター大規模計算機システムの SQUID において、OpenFOAM ソフトウェアを使用した volume of fluid (VoF) 法に

よる混相流（空気・液体）の自由表面流れ解析を行った。VoF 法は、空間を多数のセルに分割して、セル内の液体の各相の体積分率の時間変化を追跡し、液相の体積分率  $\alpha = 0.5$  となるセルを表面として、液体の空間分布の時間変化を計算する手法である。

基板の面を親水性・疎水性の領域に分割した STL ファイルとして事前に生成し、OpenFOAM に付属している cfMesh ソフトウェアによりメッシュを作成した。球形の液滴の下端が基板に接触するように topoSet プログラムにより初期位置を設定したうえで、SQUID 上で interFoam プログラムを用いて液滴の位置・形状の時間変化を計算した。ParaView を用いて液滴の座標を可視化し、また、Python スクリプトを用いて液滴の重心の座標を追跡した（水相の体積分率  $\alpha \geq 0.01$  のセルを取り、重心を計算した）。

流路形状および液滴のサイズや物性を変化させて計算する前に、計算に用いる並列 CPU コア数の最適化を行った。分岐のない単一の流路を用意して、 $2.28 \times 10^5$  個のメッシュに分割し、CPU コア数を変化させて、計算経過時間と解析中の時刻の関係をプロットした（図 2）。152 コア（2 ノード）程度で計算速度が飽和することが明らかとなったため、以後の計算では主に 2 ノードを使用して計算を行った。

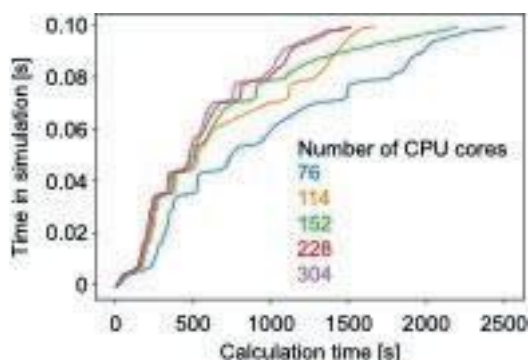


図 2 : CPU コア数を変化させた際の、計算経過時間と解析中の時刻の関係

流路形状としては、幅に勾配があり分岐のない単一の流路と、世代数 3 のフラクタル流路を用いた。単一の流路において、流路の濡れ性や形状（開き角）および液滴のサイズや物性を変化させて、液滴の輸送挙動を計算した。

### 3. 単一の流路上における液滴の輸送挙動

#### 3.1 液滴の位置の時間変化の可視化

単一の流路上に、直径 1 mm の水滴を 2 個置き、水滴の位置の時間変化を計算、可視化した（図 3）。水滴が丸い形を保ちながら、時間とともに流路の幅の広い方に向かって移動し、また、2 個の水滴が融合する様子が観察された。実際の開放型流路における水滴の輸送を再現する結果であると考えられる。さらに、融合した水滴が流路の末端に到達すると、太い方の末端で流路の逆方向に若干バウンドする様子が見られた。

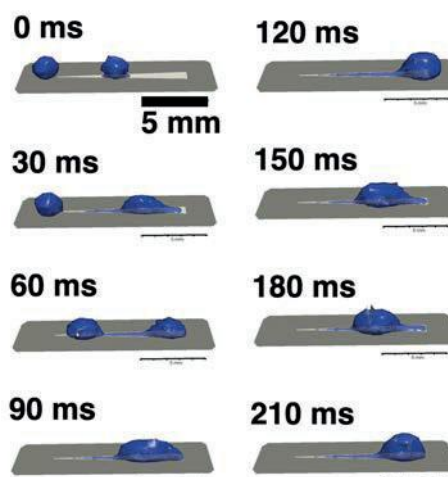


図 3 : 単一の開放型流路上における、2 個の水滴の輸送と融合の様子

#### 3.2 水滴サイズおよび基板の形状による液滴の輸送挙動の変化

長さ 5 mm、開き角  $3^\circ$  の単一の開放型流路に、水滴を 1 個置いて輸送の挙動を計算した。水滴の直径を 0.4 mm, 0.6 mm, 0.8 mm と変化させて水滴の重心座標の時間変化を追跡した（図 4）。流路水滴の直径が大きくなると、水滴の輸送速度（水滴が末端に達するまでのグラフの傾き）が小さくな

り、また、流路の太い方の末端でより大きくバウンドすることが示された。

次に、水滴の直径を 0.8 mm に固定したうえで、流路の開き角を 1°, 3°, 5° と変化させて異なる形状を用意し、それらの流路上での水滴の動きを計算した (図 5)。流路の開き角が大きくなるほど水滴の輸送速度が大きくなった。特に、開き角 1° では大幅に輸送が遅くなることが明らかとなった。これは、実際の流路デバイスを用いた実験結果と一致する挙動であった。

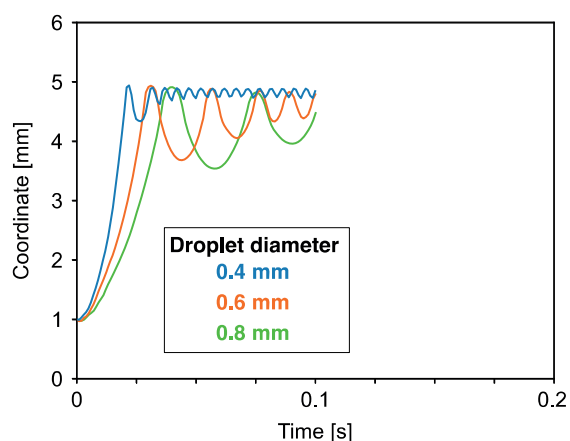


図 4 : 水滴の直径を変化させた際の、水滴の重心座標の時間変化への影響。水滴の直径 : 0.4 mm (青)、0.6 mm (橙)、0.8 mm (緑)。

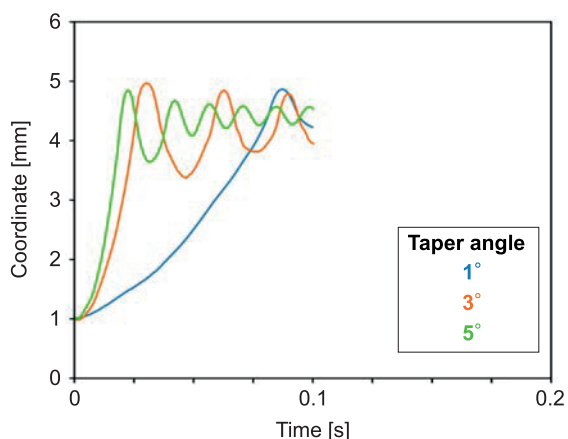


図 5 : 流路の開き角を変化させた際の、水滴の重心座標の時間変化への影響。流路の開き角 : 1° (青)、3° (橙)、5° (緑)。

### 3.3 液滴の物性および基板と流路の濡れ性による液滴の輸送挙動の変化

これまでは、用いる液滴として水滴を用いていたが、開放型流路によって輸送する液体は水に限らず、表面張力の小さい液体 (油など) も考えられる [7]。表面張力の小さい液体として、ヘキサデカンの液滴 (以下、油滴) を用いた際の輸送挙動を計算した。水とヘキサデカンは密度、粘度、表面張力が異なる (表 1) ため、同じ濡れ性 (接触角で表される) の基板表面であっても輸送挙動が異なると予想された。

表 1 : 水とヘキサデカンの物性

	水	ヘキサデカン
密度 [g/cm <sup>3</sup> ]	0.997	0.773
動粘度 [mm <sup>2</sup> /s]	0.893	3.98
表面張力 [mN/m]	72	27.4

計算の結果を、形状と濡れ性と同じ流路においては、動粘度が小さく表面張力が大きい水滴のほうが、油滴よりも輸送速度が大きくなった (図 6、青・橙)。また、油滴に対して濡れ性を増大させた (接触角を小さくした) 流路を用いると、輸送速度が大きくなった (図 6、橙・緑)。これらの結果は、表面張力の大きい液体や粘度の高い液体の液滴を効率的に輸送するためには、流路の濡れ性を適切に制御する必要があることを示唆している。

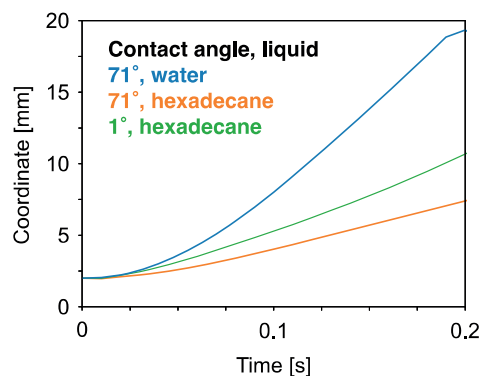


図 6 : 水滴と油滴の輸送。水滴・接触角 71° (青)、油滴・接触角 71° (橙)、油滴・接触角 1° (緑)。

#### 4. 分岐のある開放型流路における水滴の輸送・融合の挙動

階層的な分岐を有する開放型流路であるフラクタル流路における水滴の輸送挙動を計算した。分岐した流路の細い方の末端近くに 3 個の水滴を配置して、時間変化を追跡した (図 7)。水滴が分岐点で高速に (10 ms 程度) 融合し、その後、融合した大きな水滴がゆっくりと (500 ms 程度) 流路の太い方へと輸送される様子が観察された。この結果は実際のデバイスにおいて観察される様子と一致する。

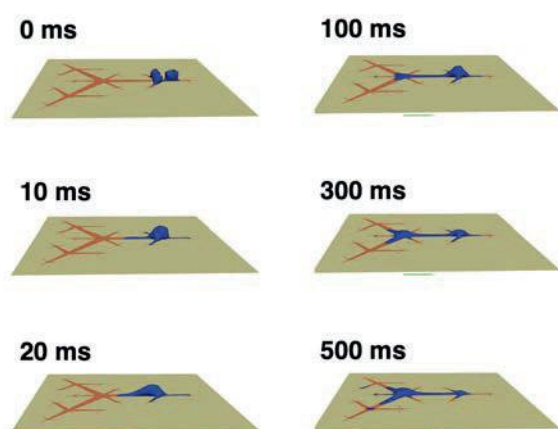


図 7 : 世代数 3 のフラクタル流路における水滴の輸送と融合の様子

#### 5. おわりに

本研究では、濡れ性をパターンニングしたフラクタル開放型流路における液滴の輸送・融合について数値解析を行った。水滴の輸送速度に影響を与えると考えられるパラメータとして、液滴のサイズ、液滴の表面張力・粘度、基板上の液滴の接触角 (濡れ性) を検討した。その結果、これらのパラメータが液滴の輸送速度に与える影響に関して、数値解析により実際のデバイスの実験結果を半定量的に再現可能であることが示された。また、階層的な分岐を有する開放型流路上での水滴の輸送について検討したところ、液滴が分岐のところで融合し、さらに、中心に近い分岐点に向かって輸送されることが確認された。この計算結果も、実験的に確認された液滴輸送挙動と半定量的な

一致が見られるものであった。したがって本研究結果は、用いる液滴の物性の違いなどに応じて、フラクタル流路に適した濡れ性の材料を選択したり、形状の最適化を行ったりする際に、合理的な設計指針を与える基盤になると期待される。

なお、液滴の接触角が小さい基板を用いた場合に、計算時間が劇的に増加することが明らかとなった。実際のデバイスでは、流路部分の液滴の接触角は  $5^\circ$  以下と非常に小さいため、複雑なフラクタル流路を有する実際のデバイスにおける液滴輸送を数値計算で定量的に再現するためには、非常に多くの計算時間を要すると考えられる。今後、フラクタル流路の対称性を利用して計算するセルの数を削減することや、接触角がより大きいケースの結果から外挿することなどが対策として考えられる。

#### 参考文献

- (1) A.Ghosh et al., Lab Chip, **14**, 1538 (2014).
- (2) P. S. Mahapatra et al., Chem. Rev., **122**, 16752 (2022).
- (3) H. Kai et al., RSC Adv., **8**, 15985 (2018).
- (4) H. Kai, MicroTAS 2020 (2020).
- (5) S. Yamamoto and H. Kai, Adv. Mater. Interfaces, **9**, 2201736 (2022).
- (6) Y. Segawa et al., submitted.
- (7) H. Kai, Transducers 2023 (2023).