

# 熱伝導性基板を用いた電解質溶液の誘電泳動

博士課程 3 年 軍司昌秀

## 1. はじめに

化学・生化学分析システムを 1 枚のチップ上に集積化する、 $\mu$ -TAS(Micro-Total Analysis System)と呼ばれるシステムは、試料や試薬の微量化、分析の高速化、装置の小型化・ローコスト化などを可能にするものとして、近年、急速に研究が進められている[1]。このような微小分析システムにおいて、試料や試薬をチップ上の目的の装置へ輸送したり、他の試薬との混合や試薬の分注を行うといった微量液体の操作技術はシステム実現の上で必要不可欠な要素である。このような背景の下、筆者らは液体の誘電泳動現象を用いた電極基板上での微量液体のアクチュエーションに関する研究を行ってきた[2]-[5]。この液体誘電泳動の概要を以下に示す。図 1 のように基板上に平行にパターンニングされ、さらにその上を絶縁層でコーティングされた電極上に液体を配置し、そこに高周波交流電圧を印加する。すると電極間に発生する不平等電界により液体に誘電泳動力が働き、液体は電極間ギャップ上を進む。図 1 写真は実際に平行電極を用いて純水の誘電泳動を行った時の様子である。電極端に純水液滴を配置し、電極間に周波数 700kHz、500Vrms の電圧を印加すると、電極ギャップ上を液体が進み電極終端に達した。このように誘電泳動によって、平行電極を流路とした液体の輸送が実現する。さらに電極の形状を変化させたり、電極をさまざまな組み合わせで配置させることにより、目的の位置に微小液滴を形成させたり、作成された微小液滴を他の液滴と混合させることも可能である[6]。ところで、誘電泳動による液体アクチュエーションシステムを実際に生化学分析装置や化学合成装置に応用する為には、純水だけでなく導電率の高い電解質溶液でも操作を行える必要がある。しかしながら、これまでの研究で導電率の高い液体を使用すると、電圧印加の際、液体内部に発生するジュール熱が大きくなり液体が蒸発してしまうことが明らかになった。この問題を解決する方法として、基板部分に熱伝導率の高い材料を用い、発生する熱を基板へ逃がす方法が挙げられる。そこでまず筆者らは誘電泳動時の液体の温度上昇の解析を行い、基板材料の変更による放熱効果の検証を行った。さらにその結果を元にアルミ基板を用いて電極を作成し、高塩濃度水溶液の誘電泳動を行ったのでこれを報告する。

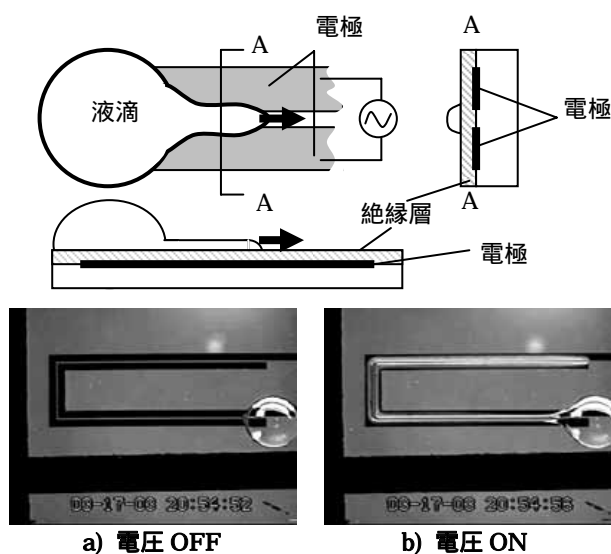


図 1 平行電極上での液体誘電泳動

## 2. 基板上的の液体の熱解析

図 2 は誘電泳動時の液体の熱伝達の模式図である。図 2-a は実際の実験系での液体の熱伝達を示しているが、この状態では液体の温度上昇の解析解が得られない。そこで図 2-b のように液体、絶縁層、基板の 3 つのパートに変形、分離してモデル化し、それぞれの温度上昇を足し合わせるにより実際の液体の温度上昇を求めた。図のように液体は半径  $r_0$  の半円形で下面是厚さ  $d$  の絶縁層、上面は断熱壁で覆われている。

円柱座標系における熱伝導方程式は

$$\frac{\lambda}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[ r \frac{\partial T}{\partial r} \right] = C_v \frac{\partial T}{\partial t} - h(r) \quad (1)$$

で表される。 $C_v$  は単位体積あたりの熱容量で、 $\lambda$  は熱伝導率  $h(r)$  は発熱量である。この時、電圧印加によって発生する熱量  $h(r)$  は

$$h = \sigma_e E^2 \quad (2)$$

である。 $(E=V/g \quad g: \text{電極間ギャップ、} \sigma_e: \text{液体の導電率})$

液体部分での温度上昇は液体中心部と外縁部の温度の差で表され、電圧印加後、時定数

$$\tau_w = \frac{C_w r_0^2}{4\lambda_w} \quad (3)$$

の速度で、温度上昇は定常状態に移る。本研究において  $r_0$  の大きさはおよそ数十  $\mu\text{m}$  であるから、時定数は約 1msec で、液体中の温度上昇は短時間で定常状態に達する。この定常状態において、液体内部の温度上昇は

$$\Delta T_w = \frac{P r_p^2}{4\lambda_w} \quad (4)$$

となる。ただし、 $P$  は液体内部全体に発生するジュール熱で、

$$P = \pi r_0^2 \sigma_e E^2 \quad (5)$$

である。

同様に絶縁層部分の温度上昇も電圧印加とほぼ同時に定常状態に移ると仮定することができるので、絶縁層の温度上昇を  $\Delta T_i$  とすると、

$$\Delta T_i = \frac{P}{2\pi r_0} \frac{d}{\lambda_i} \quad (6)$$

となる。 $d$  は絶縁層の厚さである。

最後に基板部分の温度上昇を求める。図のように基板上面は断熱面で覆われ、無限遠まで広がると仮定し、基板の温度上昇を中心部から  $r_0$  だけ離れた位置の温度と無限遠点での温度の差と定義する。ジュール熱は中心点のみで発生すると仮定すると、中心部での発熱量は

$$h(r) = P \delta(r) u(t) \quad (7)$$

となる。この時  $\delta(r)$  はデルタ関数、 $u(t)$  はステップ関数である。これらの条件から(1)の方程式を解くと、ジュール熱発生  $t$  秒後に中心部から  $r$  だけ離れた位置における基板の上昇温度は

$$T(r, t) = -\frac{P}{4\pi\lambda_s} E_i \left[ -\frac{C_s r^2}{4\lambda_s t} \right] \quad (8)$$

と表される。

ここで  $E_i$  は指数積分関数で

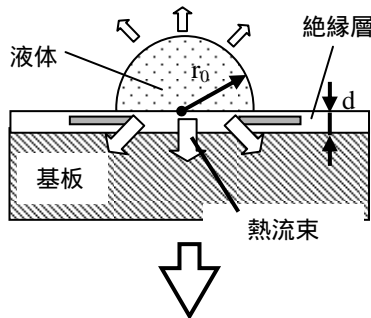
$$Ei[-z] = -\int_z^\infty \frac{e^{-t}}{t} dt \quad (9)$$

である。したがって基板部分の温度上昇は

$$\Delta T_s = -\frac{P}{4\pi\lambda_s} Ei\left[-\frac{C_s r_0^2}{4\lambda_s t}\right] \quad (10)$$

となる。

a) 実際の実験系での熱伝達モデル



b) 熱解析モデル

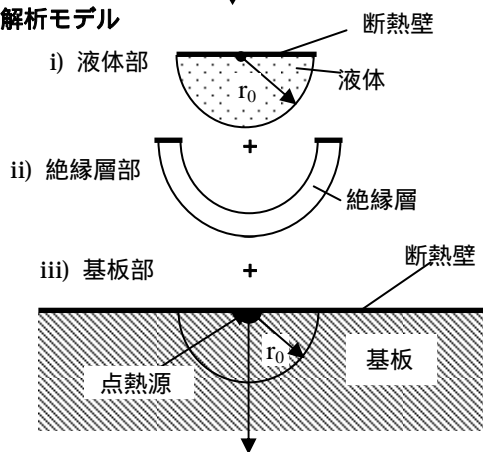


図 2 誘電泳動時に発生するジュール熱の解析モデル

上記で求められた液体、絶縁層、基板部分における温度上昇をすべて足し合わせた値が電圧印加時の液体の温度上昇となる。表 1 は純水や異なる濃度の KCl 水溶液を用いた場合の、 $r_0=30\mu\text{m}$ 、絶縁層厚さ  $10\mu\text{m}$ 、印加電圧  $100\text{V}$  の条件における各要素の温度上昇を示したものである。この表では、電界強度は  $E=V/(2r_0)$  として計算した。

この表より、使用する液体が純水のような導電率の低いものであれば、ガラス基板、アルミ基板どちらの基板上においても各部の温度はそれほど上昇しないことが分かる。次に  $1\text{mM KCl}$  水溶液のような導電率が比較的高い液体の場合、ガラス基板では基板部分において温度が大きく上昇し、液体は沸点に達してしまう、一方、アルミ基板を用いた場合には基板部分での温度上昇はガラス基板を用いた時の約 200 分の 1 と低く、アルミ基板が液体中から発生する熱を効果的に分散していることが分かる。しかしながら  $5\text{mM KCl}$  水溶液と言った導電率がさらに高いものになると、液体中の温度上昇と絶縁層中の温度上昇が支配的になり、アルミを用いた場合でも全体として大きく温度が上昇してしまう事が判明した。

基板	溶液	$\Delta T_s$ (基板)	$\Delta T_i$ (絶縁層)	$\Delta T_w$ (液体)
glass	純水	0.75	0.08	0.1
glass	1mM KCl	84	9.4	11.8
Al	純水	0.004	0.08	0.1
Al	1mM KCl	0.4	9.4	11.8
Al	5mM KCl	2.0	47	59

表 1 誘電泳動時の液体の温度上昇  
 純水の低効率:1M $\Omega$ cm, 1mM KCl の低効率:8.8k $\Omega$ cm,  
 5mM KCl の低効率: 44k $\Omega$ cm, d = 10 $\mu$ m, r<sub>0</sub> = 30 $\mu$ m  
 印加電圧 100V

### 3. 電極作成方法

上記の熱解析の結果より、1mM KCl 水溶液程度の導電率であればアルミ基板を用いることによって効果的に液体中の温度上昇を抑制させることができると予想される。そこで実際にアルミ基板を用いて誘電泳動電極を作成した。図 3 は電極の作成手順である。

- アルミ基板(A1050)の表面をアルミ研磨用コンパウンドを用いて研磨する(パフ仕上げ)。その後、水、エタノール、アセトンを用いて十分表面を洗浄し、100 のオーブンで 1 時間乾燥させる。
- スパッタリング装置(アネルバ製 L-210S-FH)により電極と基板を絶縁するための SiO<sub>2</sub> を堆積させる。この時のスパッタリング電力は 500W、基板裏面を水冷しながら 1.5 時間スパッタリングを行った。この条件での絶縁層厚さは 10 $\mu$ m であった。
- フォトリソグラフィ技術を用いて絶縁層上にアルミ電極をパターニングする。
- 液体によるアルミ電極の電気分解を防ぐため、スパッタリングを用いてアルミ電極上に再び絶縁層(SiO<sub>2</sub>)を堆積させる。この時の絶縁層厚さは 5 $\mu$ m。
- 最後に基板表面を比較的疎水的な状態に保つ為、アセトンで希釈したフォトレジスト(Shipley S1813)をコーティングし、120 で 1 時間ベークする。これは基板表面が SiO<sub>2</sub> のような強い親水性の場合、誘電泳動時に液体の流れが電極の外にはみ出てしまい、適切に液体のアクチュエーションが行われない為である。

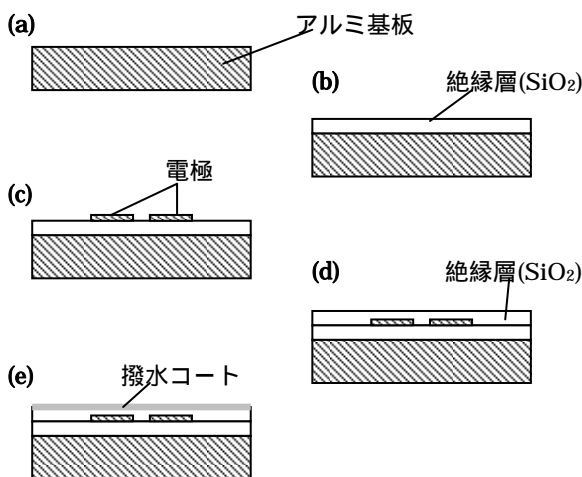


図 3 アルミ基板による誘電泳動電極の作成

### 4. 電解質溶液の誘電泳動

実際に作成したアルミ基板電極を用いてどの程度放熱効果があるかをガラス基板とアル

ミ基板上における純水、1mM KCl 水溶液の誘電泳動を比較する事により検証した。この時  
用いられた電極の電極幅は 0.5mm、電極間ギャップは 100 $\mu$ m、電極長さ 4.5cm の平行電極  
である。まずは純水を用いて液体の温度上昇の比較を行った。電極基板上に体積 10 $\mu$ l の純  
水を配置し周波数 700kHz、500Vrms の電圧を印加したところ、ガラス基板、アルミ基板ど  
ちらの基板を用いても液体は蒸発することなく電極間ギャップ上を進み、電極端まで到達  
することができた。

次に濃度 1mM の KCl 溶液を用いて誘電泳動を行った。この時の液体の導電率は約  
100 $\mu$ S/cm で純水の導電率の約 100 倍である。先程と同じ条件で電圧を印加したところ、  
ガラス基板上では電極端に液体が到達する前に液体が沸騰し、電圧印加後 2 秒ほどですべ  
ての溶液が蒸発してしまった(図 4-a)。一方、基板材料にアルミを用いた電極を使用した場  
合には液体は蒸発することなく誘電泳動によって電極端に到達することができた(図 4-b)。  
以上の結果より、電極基板に熱伝導率の高い金属材料を用いることによって液体内部に発  
生するジュール熱を効果的に放熱できることが確認された。

### 5. 液体誘電泳動の導電率依存性

1mM KCl 溶液による液体の誘電泳動を観察すると、図 5-b のように流路上を流れる液体は電極  
間ギャップ上だけでなく流路全体に広がりながら進んでいることが明らかになった。これは誘電泳  
動による液体の流れの形態に導電率依存性がある事を示している。図 6 は誘電泳動時の電極と  
液体との関係を等価回路で示した模式図である。図のように液体部分は抵抗とコンデンサーを並  
列に組み合わせたものと考えられ、また電極と液体間の絶縁層はコンデンサーと考えることができ  
る。この時印加する電圧の周波数を  $f$  とすると液体部分に掛かる電圧の大きさは、

$$V_w = \frac{2\pi f \cdot C_i \cdot V}{\sqrt{4G_w^2 + (2\pi f (C_i + 2C_w))^2}} \quad (11)$$

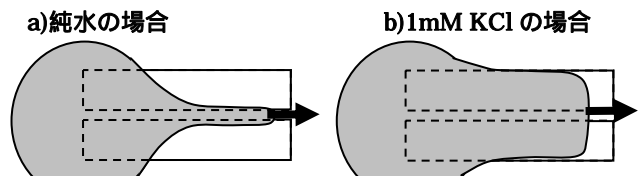
となる。

ここで  $G_w$  は液体のコンダクタンス、 $C_w, C_i$  はそれぞれ液体と絶縁層のキャパシタンスである。

これは電源の周波数が一定の場合、液体のコンダクタンスが大きくなればなるほど、液体中に  
掛かる電圧が小さくなる事を意味している。すなわち液体の導電率が高くなると、電界が液体中に  
発生し難くなり液体に作用する誘電泳動力は弱くなってしまふ。一方で液体表面に誘起された電  
荷と電極から発生する電界との相互作用によって液体の電極全体に広がるようにする力が強く掛か  
るようになる(エレクトロウエティング現象)[7]。そのため図 5-b のように液体は電極全体に広がりな  
がら電極上を進むようになると考えられる。図 7 はアルミ基板を用いて濃度 0.1mM の KCl 水溶液  
の誘電泳動を行った時の液体の様子である。液体は純水と 1mM KCl 水溶液を行った場合のほ  
ぼ中間の幅を進んでいる。これは誘電泳動力による液体が電極ギャップに引き寄せられる力と、  
静電気力による液体が電極上に広がるようにする力が電極のほぼ中間で釣り合っている為と考えら  
れる。



6. 図のガラス基板に電極をそれぞれ配置し(a)、電極間に電圧を印加する。すると液体



板上の目的の位置に微小液滴を作成し、電極間に電圧を印加する。すると液体は電極間を進む。電極幅が一定の場合、液体のコンダクタンスが大きくなればなるほど、液体中に掛かる電圧が小さくなる事を意味している。すなわち液体の導電率が高くなると、電界が液体中に発生し難くなり液体に作用する誘電泳動力は弱くなってしまふ。一方で液体表面に誘起された電荷と電極から発生する電界との相互作用によって液体の電極全体に広がるようにする力が強く掛かるようになる(エレクトロウエティング現象)[7]。そのため図 5-b のように液体は電極全体に広がりながら電極上を進むようになると考えられる。図 7 はアルミ基板を用いて濃度 0.1mM の KCl 水溶液の誘電泳動を行った時の液体の様子である。液体は純水と 1mM KCl 水溶液を行った場合のほぼ中間の幅を進んでいる。これは誘電泳動力による液体が電極ギャップに引き寄せられる力と、静電気力による液体が電極上に広がるようにする力が電極のほぼ中間で釣り合っている為と考えられる。

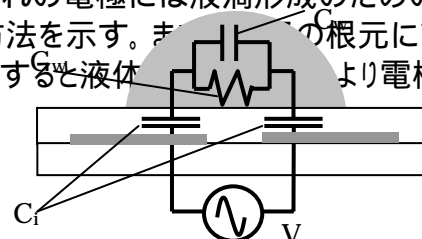


図 6 液体と電極基板の等価回路

み、最終的には電極全体は液体によって満たされる(b)。その後、印加していた電圧を切ると電極上の液体はキャピラリーインスタビリティにより分裂し、円形電極上に微小液滴が形成される(c)。続いて電極の接続を変更し、再び電極間に電圧を印加すると電極上の液滴は静電気力により隣の液滴と互いに引き合い融合する(d)。

図 9,10 は実際に作成した液滴融合電極のデザインと、これを用いて基板上に KCl 水溶液の液滴を作成、融合した際の写真である。電極上に濃度 1mM KCl を配置し(a)、電極間に周波数 800 kHz、700 Vrms の交流電圧を印加すると、誘電泳動力によって KCl 溶液は電極全体に広がった(b)。続いて、印加していた電圧を切ると円形電極上に液滴が形成された(c)。この時電極上に形成された液滴の量はそれぞれ 4nl である。その後、電極の接続を切り換えて再び電圧を印加することにより、静電気力により電極上の隣り合う液滴が融合した(d)。

## 7. 結論

本研究では電解質水溶液を用いるジュール熱を発生させるため、基板材料に熱伝導率の高い材料を使用した場合における。その結果、1mM 程度の塩濃度であれば、基板材料にアルミニウムを用いることで液体中のジュール熱を蒸散できることが判明した。

この結果を基に用いた液体誘電泳動電極を実際に作成しこれを用いることで、これまでガラス基板電極上では液体の温度上昇によって操作することが困難であった 1mM KCl 水溶液を蒸発させることなく誘電泳動により操作することが可能である。また、基板電極を用いて微小な試料液滴を目的の位置に作成し、別の試料液滴を作成し(c)mM KCl 水溶液の微小液滴作成と作成された液滴の積の等しい液滴を作成したが、図 10 のように円形電極の面積を調整することで試薬の混合も可能である。

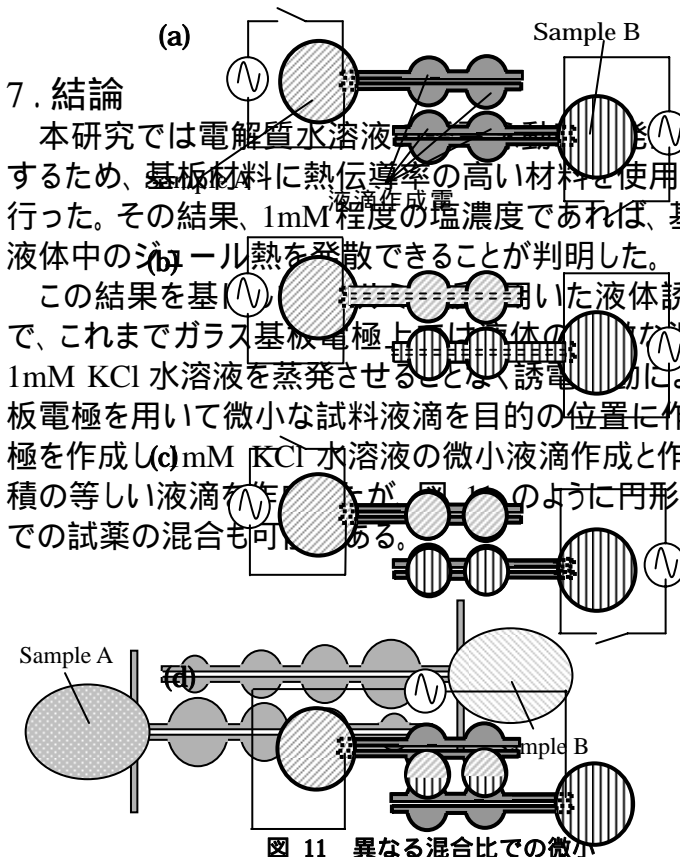


図 11 異なる混合比での微小液滴の融合

## 謝辞

研究を進めるにあたり多大なる助言を頂いた米国 Rochester 大学 高等専門学校の伊藤友仁 助教授に対し心より謝意を表します。また、このマスクは東京大学大規模集積システム設計教育研究センター(VLSI)で製作されました。

## 参考文献

- [1] Micro Total Analysis Systems 2002 (Kluwer Academic Publishers, 2002)
- [2] M.Gunji, T.B.Jones and M.Washizu, "Dielectrophoretic Microfluidic device" Proc. IEJ-ESA Joint Symposium on Electrostatics, pp78-87, 2000
- [3] T.B.Jones, M.Gunji, M.Washizu and M.J.Feldman, "Dielectrophoretic liquid actuation and nanodroplet formation", Journal of Applied Physics, Vol. 89, No.2, pp.1441-1448(2001)
- [4] M.Gunji, T.B.Jones and M.Washizu "DEP Microactuation of Liquids", Technical Digest of

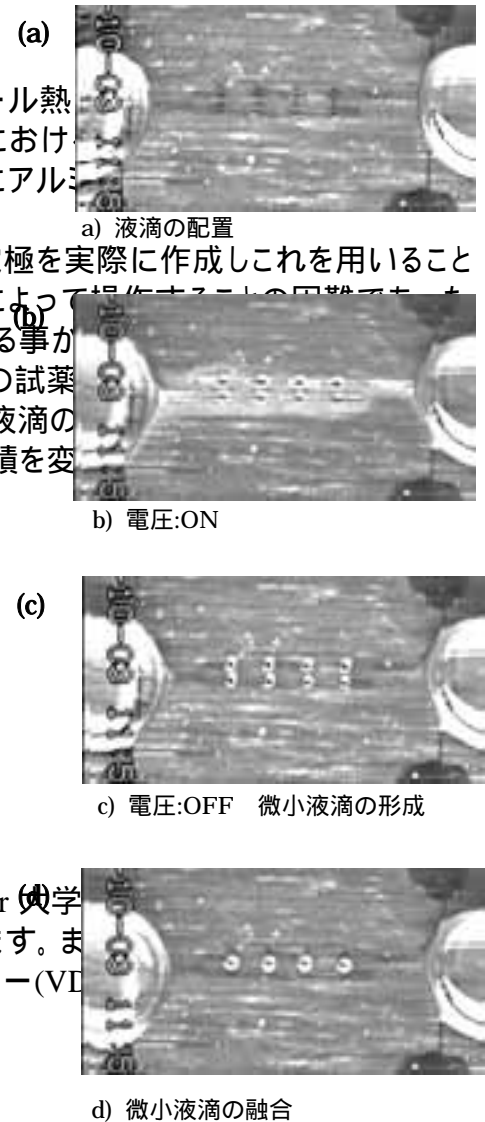


図 10 1mM KCl 溶液を用いた微小液滴の作成と融合

図 9 液滴融合電極デザイン

MEMS 2001, pp385-388 (2001)

- [5] 軍司昌秀, T.B.Jones, 鷺津正夫 “誘電泳動による液滴の形成と融合” 静電気学会講演論文集’02, pp.155-158 (2002)
- [6] M. Gunji, T.B.Jones and M.Washizu, “DEP-driven simultaneous 2 x 2 droplet mixer array”, Proc. Micro Total Analysis Systems 2002, pp.721-723 (2002)”
- [7] T.B.Jones, “On the Relationship of Dielectrophoresis and Electrowetting”, Langmuir, Vol.18, pp.4437-4443 (2002)