



単相交流電圧による液滴の静電操作

軍 司 昌 秀^{*1}, 中 西 博 昭^{**}, 鷲 津 正 夫^{*}

(2004年8月23日受付, 2004年11月6日受理)

Droplet Actuation Based on Single-phase Electrostatic Excitation

Masahide GUNJI^{*1}, Hiroaki NAKANISHI^{**} and Masao WASHIZU^{*}

(Received August 23, 2004; Accepted November 6, 2004)

A new concept of electrostatic droplet actuation based on field-induced deformation of the droplet is presented in this paper. The device consists of a diagonal fishbone-shaped electrode array with a hydrophobic coating. When energized with an AC voltage, a droplet dispensed on the electrode undergoes a periodical motion of flattening and restoring the spherical shape, and because of the geometrical asymmetry of the electrodes, its center of mass is shifted bit by bit in each cycle. The actuation speed as high as 2.4 cm/s is achieved for a 1 μ L-droplet on a 240 μ m-pitch electrode array with 50 Hz, 50 Vrms excitation. Droplet sorting and mixing are also demonstrated by bifurcating and merging electrode arrays. The method only requires a pair of planar electrodes that can be fabricated by a single-mask process, and a single-phase power supply, leading to a simple and low-cost droplet-based micro-chemical system.

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、 μ -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⁾。現在の μ -TAS研究においては、ガラスやシリコン基板中に微細な流路を作成し、ポンプやバルブによる機械的な流体制御や電気泳動、電気浸透流といった電気的手法を用いて、流路中で液体試料の反応や分析を行う閉鎖型の分析システムの開発が主流となっている。しかしながら、このような閉鎖型システムには、開放系での操作が行えない、連続した流路の中での流体の一部だけを動かすことが困難、デッドボリュームがさげられないといった問題点がある。

一方、これらの問題を解決するものとして、流路で完全に覆ってしまわない形、すなわち半開放系で液体試料や試薬を液滴の形として扱うシステムも提案されている。図1に半開放系システムを用いた液滴試料の反応・分析プロセスの概念図を示す。基板上に分析や反応の対象となる試料液滴が作成・配置され、この液滴が輸送路に従って他の試薬液滴との合流点

へと輸送される。同様に反応試薬も液滴の形で輸送され、合流点で試料液滴と融合する。その後、試薬と融合した試料液滴は別の場所に設置された各種分析センサーや反応プロセス領域へ分岐され、分析や反応が行われる。

上記のような半開放系分析装置を実現するためには、「基板上の目的の位置に迅速且つ正確に液滴を輸送する技術」の実現が必要不可欠となる。これまでのところ、基板上での液滴輸送技術について幾つか報告されており、例えば、基板上にマイクロヒーターアレイを作成し、これを用いて基板上に温度勾配を発生させることで基板上の液滴にマランゴニ効果を引き起こし液滴を温度の低い領域へ移動させる技術²⁾や、基板上に光反応性の有機材料を塗布し、液滴を移動させたい領域に紫外線を照射して、基板表面を部分的に親水化することにより、液滴を輸送させる技術³⁾などが報告されているが、これらの方法は液滴の輸送速度が1~2 cm/minと遅く、迅速な分析や反応を行うには不向きである。

このような背景の下、筆者らの研究グループは、基板上のストリップ状電極に電圧を印加して液体に働く誘電泳動力により電極に沿った動きを作り、これにより液体の駆動・液滴化や混合を行う手法を開発した^{4)~8)}。しかしながら、この誘電泳動力を利用した液体操作法には、試料の導電率が高くなると液体内の発熱が大きくなり、駆動が困難になるという問題点があり、扱うことの出来る液体の種類が大幅に限定されてしまう。

また Electrowetting を利用して、タイル状に作られた電極配列に順次電圧を印加して x-y 平面上の任意の位置に液滴を移動させる手法⁹⁾や、表面を疎水化した多相電極を基板上に配

キーワード : Droplet actuation, Electro wetting, Micro-TAS

* 東京大学工学系研究科機械工学専攻 (113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1)

Department of Mechanical Engineering, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113, Japan.

** (株) 島津製作所 (604-8511 京都市中京区西ノ京桑原町 1) Shimadzu Corporation, 1 Kuwabara-cho, Nakagyo-ku, Kyoto 604, Japan

¹ gunji@washizu.t.u-tokyo.ac.jp

列し、個々の電極に電圧を順次印加していくことにより液滴を転がるように移動させる手法¹⁰⁾も報告されているが、いずれの手法にも、電氣的結線が複雑になり、多層配線技術を用いる必要があるといった問題点が存在する。

今回筆者らは、基板上にパターンニングされる電極の形状を工夫し電極上の液滴に静電引力によるインチワーム運動を誘起させることで、単純な単層配線、単相交流電圧での液滴の駆動を可能にする手法を新たに開発した。本稿ではこの手法の基本原理と、さらにこれを用いた液滴分岐、合流デバイスへの応用を報告する。

2. 液滴輸送電極デザインと輸送原理

図2に今回作成した液滴輸送電極のデザインを示す。フォトリソグラフィ技術を用いて平坦な基板上一対の櫛歯状電極が液滴進行方向に対し $\pm 45^\circ$ の角度で向かい合っており、電極上には絶縁層としてSiO₂層が堆積されている。さらに基板上はテフロンコーティングにより疎水処理が施される。

続いてこの電極を用いた液滴輸送の原理を示す。まずは電極基板上に液滴を配置する(図3-a)。この時、基板上はテフロンによる疎水性処理が施されているため、液滴の体積がマイクロリットルオーダーといった十分小さい場合には、基板上の液滴形状はほぼ球形を保つ。その後、電極間に交流電圧を印加すると、液滴と電極間に発生する静電引力により、液滴は電極上に引き寄せられ、電界が最大となる交流電圧のピーク付近では液滴が扁平化し(図2-b)、また電圧が0Vになる瞬間付近では変形が電界から解放され球状にもどるような振動を生ずる(図2-c)。この時、扁平化の生じるサイクルでは、櫛歯状電極のエッジの作る電界集中により、櫛歯を越えた変形が生じにくく、図2-bのように液滴は電極に沿った形状に変形するの

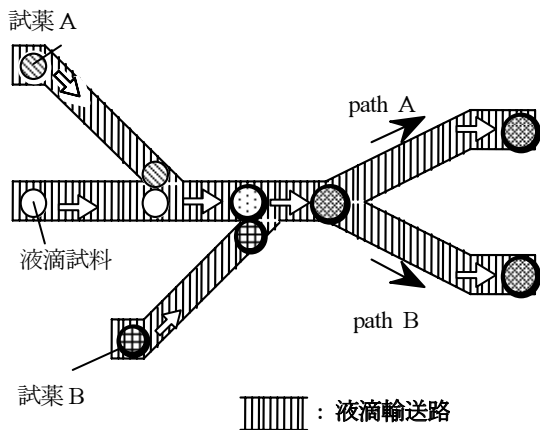


図1 半開放系微小分析装置の概念図
Fig.1 Schematic image of droplet-based micro reactor.

に対し、解放されるサイクルでは等方的に球形に近い形に戻る。櫛歯状電極が進行方向に対して $\pm 45^\circ$ の非対称な形をしているため、変形サイクルが生ずるたびに、液滴は移動しやすい方向へと移動していくことになる。すなわち、このインチワームメカニズムにより、液滴は一方方向(図中の右側から左側)へと輸送されることになる。

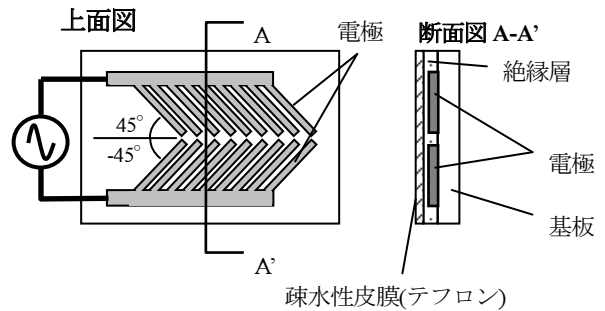


図2 液滴輸送電極デザイン
Fig.2 The design of droplet actuator.

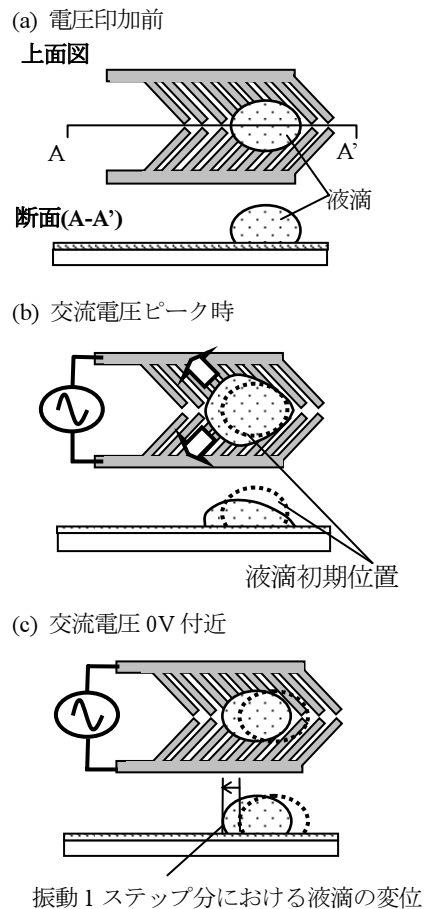
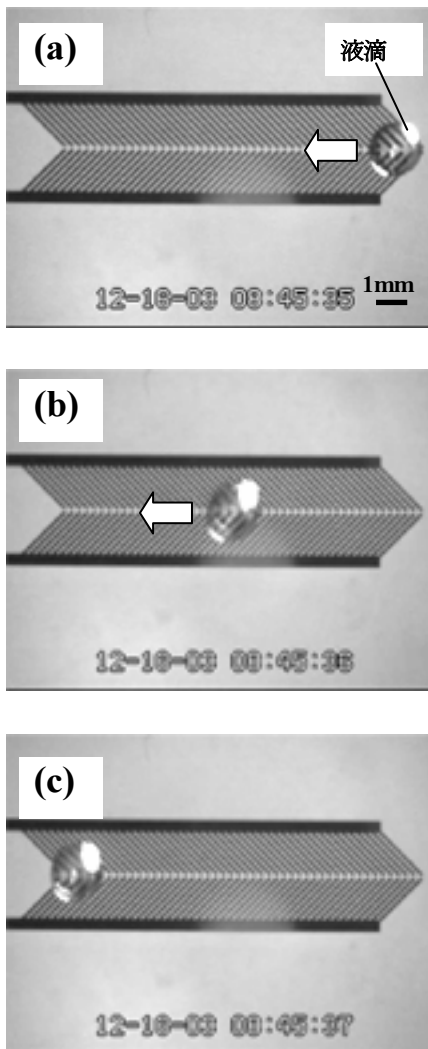


図3 インチワーム運動による液滴輸送原理
Fig.3 The mechanism of droplet movement.

3. 櫛歯型電極による液滴の輸送実験

図4に実際に作成された櫛歯型電極を用いて液滴の輸送を行った時の様子を示す。この時作成した櫛歯電極ピッチは240 μm で、櫛歯電極1本の幅と櫛歯間隔はそれぞれ120 μm 、対向する櫛歯電極間のギャップは30 μm である。また絶縁層の厚さは約1 μm 、テフロンのスピンコートによる疎水コートは約0.1 μm である。

電極上に体積1 μL の蒸留水を滴下し(図4-a)、周波数50Hzの交流電圧を徐々に印加したところ、液滴は静電引力によりその場で振動を始め、電圧が約50Vrmsに達したところで液滴は振動を伴いながら図中矢印で示される電極長手方向に沿って移動し(図4-b)、電極終端に達すると移動を停止した(図4-c)。この時の液滴の移動速度は約2.4 cm/sであった。



印加電圧:~50 Vrms, 周波数:50 Hz,

電極ピッチ:240 μm , 移動速度:~2.4 cm/s

図4 櫛歯電極上での液滴輸送の様子

Fig.4 Droplet movement on the fish-bone electrode.

4. 考察

4.1 液滴の移動速度

本研究で用いたインチワームメカニズムによる液滴の移動速度は、(液滴の振動1ステップあたりの移動距離) \times (変形サイクルの周波数) によって決定される。

この1ステップあたりの移動距離は、変形の大きさに依存し、電極ピッチの整数倍となる。すなわち、電極に電圧が十分に印加されないと交流電圧ピーク時における液滴の変形量が電極ピッチを越えることが出来ず、液滴の移動は発生しないが、逆に印加電圧が十分に高ければ、液滴に大きな変形が生じ、電極ピッチ1つ以上の移動を生ずることも可能である。

また、液滴の変形は印加電界と液滴に誘導される電荷の相互作用によって生じるため、変形は交流電圧の半周期あたり1回、すなわち変形サイクルの周波数は、印加周波数の2倍となる。

図5は櫛歯電極上での液滴の移動の様子を、高速度カメラを用いて側面から観察したものである。この時印加した交流電圧の周波数は50Hzで、電圧の大きさは液滴の移動が発生する最小の電圧である50Vrms、櫛歯電極のピッチは240 μm である。液滴の変形サイクルは10ms(周波数100Hz)で、振動1サイクル毎に電極ピッチ1つ分(240 μm)ずつ移動している様子が観察された。

4.2 液滴の変形量の周波数依存性

上記のように、インチワームメカニズムが生ずるためには、液滴の変形がある程度以上大きいことが必要である。一般に、時間とともに変化する外力による液滴の変形は、液体の表面張力および質量によって支配される強制振動となり、ある周波数で共振がおきる。従って、液滴の変形を大きくするには、系の固有振動と共振するように印加周波数を選ぶこと、すなわち、(電源周波数) = (液滴の固有周波数) \div 2, となるように選ぶことが有効である。

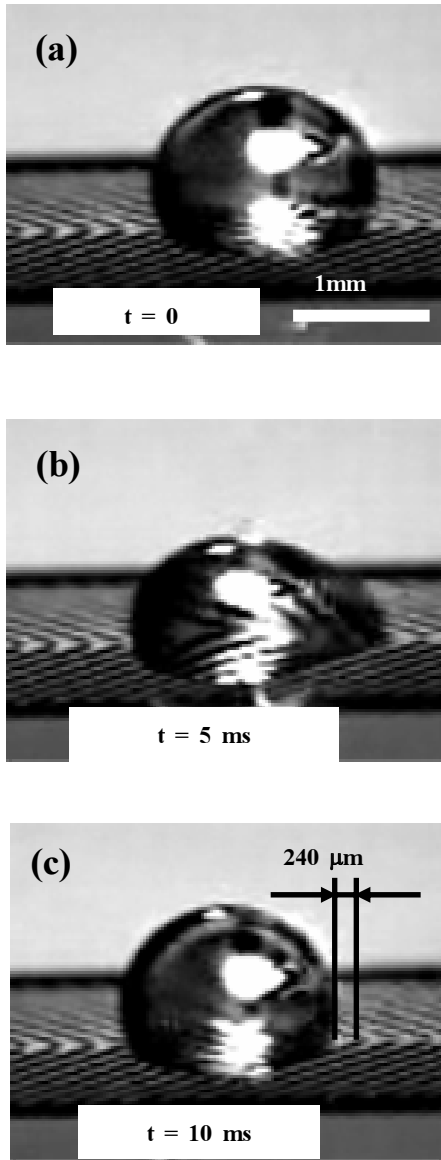
この振動の固有周波数 f_c は、空間中に孤立した半径 a の球形液体粒子に対して、

$$f_c = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{(n-1)n(n+2)\gamma}{\rho a^3}} \quad (1)$$

で与えられる¹¹⁾。ここで、 n はモード数、 ρ は液体の密度、 γ は表面張力である。

式(1)は、最低次のモード $n=2$ 、体積2 μL の水に対して $f_c = 17.6$ Hzを与える。一方、図6は、電極上において液滴を駆動させるための最低電圧の測定値を周波数に対してプロットしたもので(使用した櫛歯電極のピッチは240 μm 、 SiO_2 絶縁層の厚さは5 μm)、60 Hz付近で最も低い電圧で液滴が駆動できること

を示している。式(1)は空間中に孤立した球を境界条件に用いて計算した場合の値で、実験においては液滴が 105° 程度の接触角をもって基板に置かれていることを考慮すれば、この値は $f_c / 2 = 88 \text{ Hz}$ と比較的良好一致を示していると考えられる。



電圧周波数 50 Hz, 液滴振動周期 10 ms

図5 高速度カメラによる液滴形状変化の観察
Fig.5 Time sequence of droplet movement recorded with a high-speed camera.

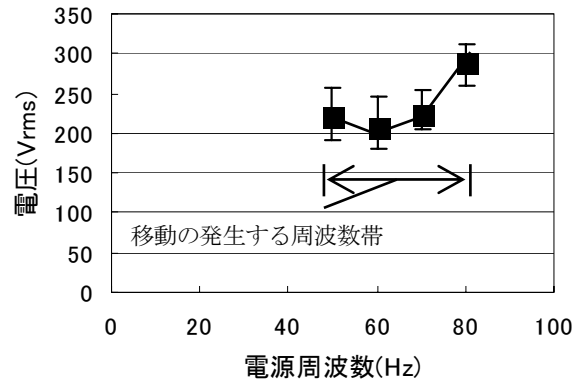


図6 駆動最低電圧と電源周波数の関係

Fig.6 Measured minimum voltage for droplet actuation.

5. 液滴輸送路の分岐,合流への応用

これまで紹介した輸送電極を組み合わせることで、液滴輸送路の分岐・合流が可能になる。以下にこれらの電極について説明する。

5.1 液滴分岐電極

図 7.8 は液滴分岐電極デザインと実際に液滴分岐電極を用いた液滴輸送の様子である。3組の液滴輸送電極を Y 字型に組み合わせることで液滴の進路を 1つの入り口 (図中右) から 2つの出口 (図中左上,左下) のいずれかへ分岐させる。液滴を電極入り口に配置し、図 8-a,b に示されるように入り口側の輸送電極と出口 B 側の輸送電極に交流電圧を印加する(周波数 50 Hz, 印加電圧 50 Vrms)。すると液滴は電極入り口から分岐点に達した後に(図 8-b)、電圧の印加されている出口 B の輸送電極へと偏向された(図 8-c)。

5.2 液滴合流電極

さらにこの液滴分岐電極において、電極パターンを前後逆転することで、液滴の進行方向を反転させれば、2つの液滴の進路を 1つの進路に合流させる液滴合流電極を作成することが出来る。図 8 に液滴合流電極のデザインを示す。図 9 に実際に作成した液滴合流電極を用いて、別々の輸送電極に配置された 2つの液滴を 1つの輸送電極に合流させた時の様子を示す。A,B 2つの入り口(図 9 右,下)に蒸留水(体積 $1\mu\text{L}$)を配置し、図 9-a に示されるように 3組すべての輸送電極に交流電圧を印加する(周波数 50 Hz, 印加電圧 50 Vrms)。すると入り口 A, B に配置された液滴は電極中央の合流点を通じて電極出口に輸送され(図 9-b)、最終的に 2つの液滴が電極出口終点において融合した(図 9-c)。

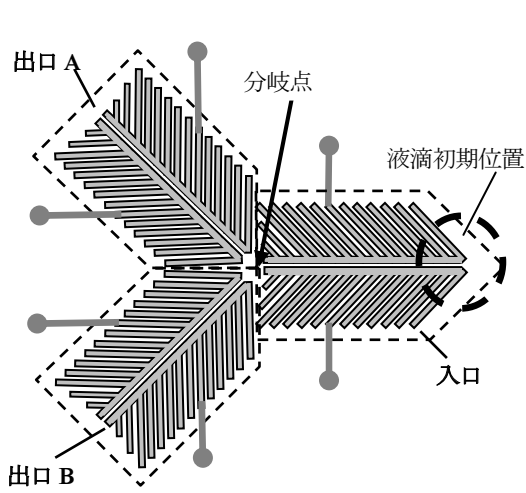


図7 液滴分岐電極デザイン

Fig.7 The design of droplet sorter.

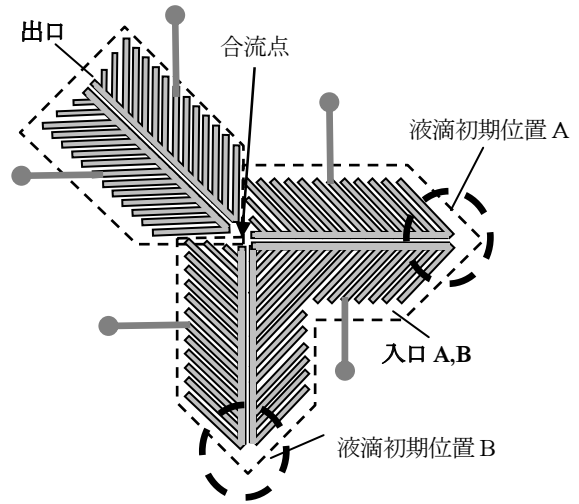


図9 液滴合流電極デザイン

Fig.9 The design of droplet mixer.

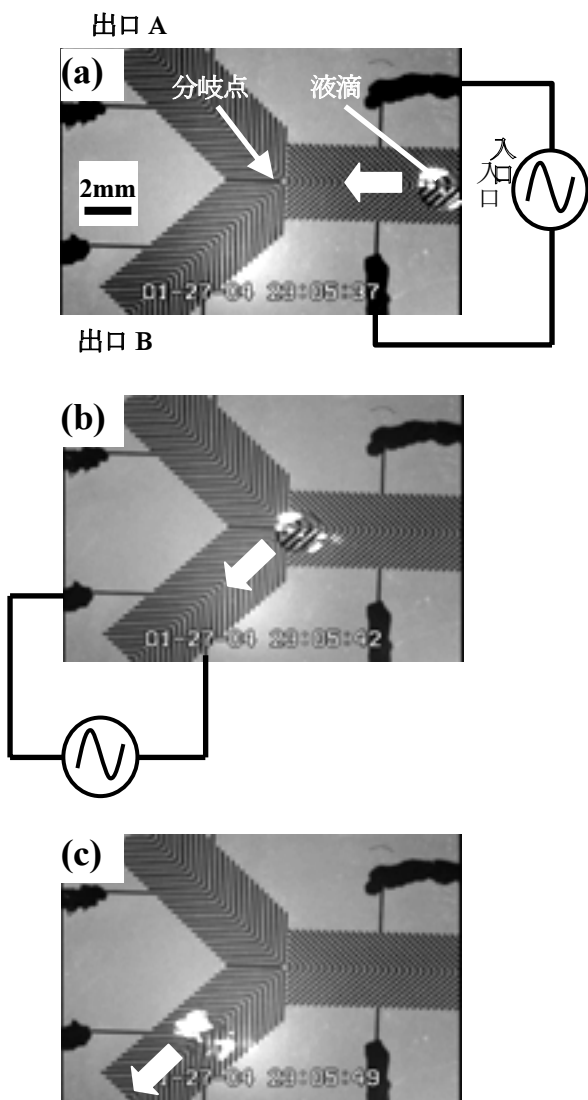


図8 液滴分岐電極による液滴進路の分岐

Fig.8 Droplet sorting using bifurcating electrode array.

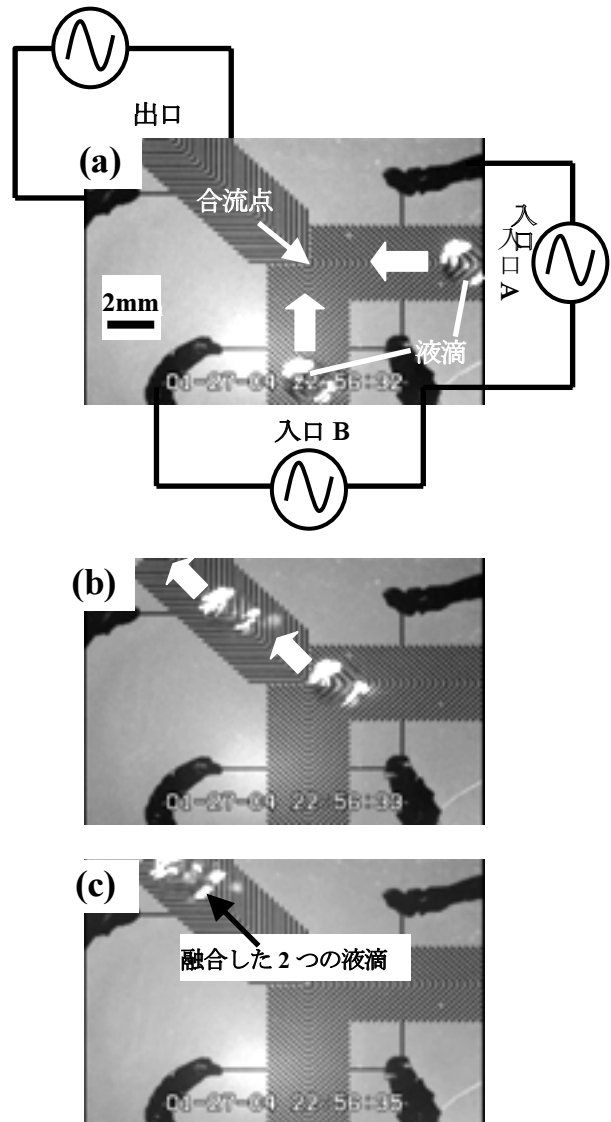


図10 液滴合流電極による輸送路の合流

Fig.10 Droplet mixing using merging electrode array.

6. まとめ

半開放系微小分析システム実現のための新たな液滴輸送方法として、電極形状を液滴進行方向に対して非対称な形にすることで、電極上の液滴にインチワーム運動を引き起こし、これにより液滴を電極上の目的の位置へと輸送する方法を開発し、実際にこれを用いて単相交流電圧による液滴の輸送に成功した。

さらにこの液滴輸送電極を組み合わせることで、1本の液滴輸送路を2本の液滴輸送路へ分岐させたり、2本の液滴輸送路を1本の液滴輸送路へ合流させる、液滴分岐・合流電極を開発した。

本研究で開発された液滴輸送・分岐・合流電極を組み合わせることで、液滴試料の輸送や、他の試薬との混合、反応液滴の分別、さらには別の分析装置への導入といった分析・反応プロセスに必要な操作を基板上で行うことが可能となる。

本研究を行うにあたり、有益な議論とご助力を頂いた東北大学の川野聡恭教授、東京大学の中尾政之教授に対し心より謝意を表します。本研究の一部は生研センター(BRAIN)、日本学術振興会科学研究費補助金(課題番号 16-61612)及び、文部科

学省科学研究費補助金(基盤研究 A14205037)の助成を受け行われました。

また、電極パターンニングのためのマスクは東京大学大規模集積システム設計教育研究センター(VDEC)の EB 描画装置を用いて製作されました。

参考文献

- 1) Micro Total Analysis Systems 2002 (Kluwer Academic Publishers, 2002)
- 2) Y.T.Tseng, F.G.Tseng, Y.F.Chen and C.C.Chieng: *Sens. Actuators A*, **114**, (2004) 292
- 3) K.Ichimura, S.K.Oh and M.Nakagawa: *Science*, **288** (2000) 1624
- 4) M.Gunji, T.B.Jones and M.Washizu: *Proc. IEJ-ESA Joint Symposium on Electrostatics*, pp.78-87 (2000)
- 5) T.B.Jones, M.Gunji, M.Washizu and M.J.Feldman: *J. Appl. Phys.*, **89** (2001) 1441
- 6) M.Gunji, T.B.Jones and M.Washizu: *Technical Digest of MEMS2001*, pp.385-388 (2001)
- 7) 軍司昌秀, T.B.Jones, 鷲津正夫: 静電気学会講演論文集'02, pp.155-158 (2002)
- 8) 軍司昌秀, 鷲津正夫: 静電気学会講演論文集'03, pp.123-128 (2003)
- 9) J.Lee, H.Moon, J.Fowler, T.Schoellhammer and C.-J.Kim: *Sens. Actuators A*, **95** (2002) 259
- 10) M.Washizu: *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **34**(4) (1998) 732
- 11) H. Lamb: *Hydrodynamics 6th Edition*, Cambridge University Press (1975)