

MESSUNG ZEITABHÄNGIGER STRÖMUNGSFELDER IN EINEM ELEKTROOSMOTISCH ERREGTEN MIKROMISCHER

H. Farangis Zadeh, P. Ehrhard

Forschungszentrum Karlsruhe
Institut für Kern- und Energietechnik
Postfach 3640
D-76021 Karlsruhe

Zusammenfassung

Die experimentelle Validierung der Strömung in einem elektrisch erregten Mikromischer (mit Mäander) steht im Mittelpunkt dieser Arbeit. Für die Messung des (lokalen) Geschwindigkeitsfeldes wird das μ PIV Verfahren eingesetzt. Wenn elektroosmotische Kräfte auf die Flüssigkeit wirken, finden wir bereits in geraden Kanälen komplexe Geschwindigkeitsfelder, welche nahe der Wände durch die Elektroosmose und in der Kanalmitte durch den Druckgradienten bestimmt sind. So können nahe der Wände Strömungen entgegen der druckgetriebenen Hauptströmung auftreten. Im Mäander wird eine sehr komplexe Strömungsstruktur beobachtet, welche durch eine Anzahl von Wirbel- und Sattellinien charakterisiert werden kann.

Einleitung

Die Untersuchung von Misch- und Trennprozessen in Mikrokanälen ist von großer Bedeutung angesichts der Verwendung solcher Komponenten in sog. „lab-on-chip“ Anwendungen. Aktuelle Arbeiten zu passiven Mikromischern konzentrieren sich beispielsweise auf ebene Haarnadel-Kanäle (siehe Yamaguchi et al. 2004), auf dreidimensionale Serpentina-Kanäle (siehe Liu et al. 2000) oder auf Reliefstrukturen auf den Wänden von Mikrokanälen (siehe Stroock et al. 2002), um zentrifugal beschleunigte oder chaotische Strömungen zu erhalten, welche die Vermischung verbessern. Alternativ können aktive Methoden verwendet werden, um eine Sekundärströmung anzuregen. Aktive Methoden können etwa durch magnetische Kräfte (siehe Yi et al. 2002) oder durch elektroosmotische Kräfte (siehe Qian & Bau 2002, Meisel & Ehrhard 2005) realisiert werden.

Letztendlich müssen alle Ideen und Modellvorstellungen zu Mikromischern (und zu Mikrotrenneinheiten) durch Experimente validiert werden. Hierbei ist insbesondere die Messung von Strömungs- und Konzentrationsfeldern von Bedeutung. Wir konzentrieren uns auf einen elektrisch erregten Mikromischer, wie er von Meisel & Ehrhard 2005 vorgeschlagen wird. Dieser Mikromischer besteht aus einer Y-Zusammenführung zweier Einlasskanäle und einem einfachen Mäander stromab im Auslasskanal. Die theoretischen Simulationen von Meisel & Ehrhard 2005 zeigen, dass durch ein oszillierendes elektrisches Feld eine Sekundärströmung angeregt werden kann, welche der druckgetriebenen Hauptströmung überlagert ist. Diese zeitabhängige Sekundärströmung ist geeignet die Vermischung der Flüssigkeiten deutlich zu verbessern. Wir konzentrieren uns an dieser Stelle ausschließlich auf die Mes-

sung des Geschwindigkeitsfeldes. Ein Verfahren zur Messung des Konzentrationsfeldes in Mikrokanälen, sowie ausgewählte Messungen, werden von Matsumoto et al. 2005 diskutiert.

Experimenteller Aufbau

Ein Überblick zum experimentellen Aufbau ist in Abb. 1 gegeben. Um die Strömung der Flüssigkeiten durch den Mikromischer in einem weiten Bereich von Reynolds-Zahlen zu erreichen, finden zwei unterschiedliche Systeme Anwendung. Für kleine Reynolds-Zahlen werden zwei Einlass-Reservoirs geodätisch über dem Auslass-Reservoir angeordnet, so dass eine schwerkraftgetriebene Strömung entsteht. Für große Reynolds-Zahlen werden stattdessen zwei Spritzenpumpen verwendet. Die Hauptströmung tritt über die beiden Einlasskanäle in den Mikromischer ein und verlässt den Mikromischer über den Auslasskanal, welche den Mäander aufweist. Die Teilströme durch beide Einlasskanäle werden gleich gehalten. Das Fluid ist destilliertes Wasser, welches eine niedrige elektrische Leitfähigkeit besitzt, um eine optimale elektroosmotische Erregung zu ermöglichen. Der Massenstrom im Auslasskanal wird über eine zeitaufgelöste Präzisionswägung des Auslass-Reservoirs erfasst. Aus dem Massenstrom \dot{m} kann, bei bekannter Dichte ρ , der Volumenstrom $\dot{V} = \dot{m} / \rho$ berechnet werden. So gelingt es die Reynolds-Zahl der (druckgetriebenen) Hauptströmung im quadratischen Kanal gemäß

$$Re = \frac{\dot{V}}{d \nu}$$

mit der Kanalweite d und der kinematischen Viskosität ν zur erhalten. Es werden temperaturabhängige Stoffdaten ν , ρ verwendet, wobei naturgemäß die Temperaturen aller Teilströme erfasst werden.

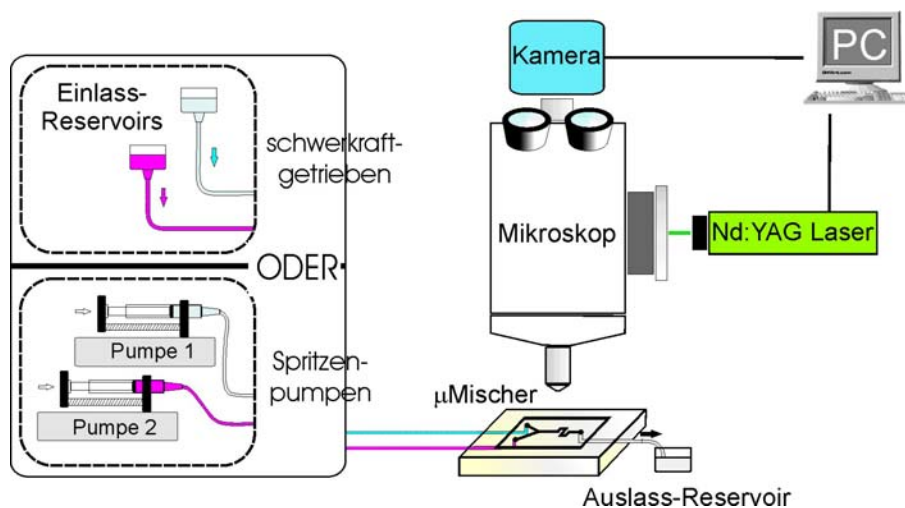


Abb. 1: Experimenteller Aufbau.

Neben der druckgetriebenen Hauptströmung wird ein zeitabhängiges elektrisches Feld verwendet, um die elektroosmotische Sekundärströmung anzuregen. Der Aufbau ist in Abb. 2 gezeigt. Eine Potentialdifferenz von 5 kV wird hierzu über ein zeitgesteuertes Relais an den Elektroden angelegt. Das erste Potential liegt auf der Elektrode im Auslass-Reservoir, das zweite Potential liegt auf beiden (verbundenen) Elektroden der Einlass-Reservoirs. Die Steuerung des Relais erfolgt über einen Funktionsgenerator, bei einer definierten Frequenz von 0.1 Hz. So wird erreicht, dass ein elektrisches Feld entsteht, welches in etwa tangential

zum Mikrokanal gerichtet ist. Bei jeder Schaltung des Relais (nach jeweils 5 s) kehrt sich die Richtung des elektrischen Feldes um.

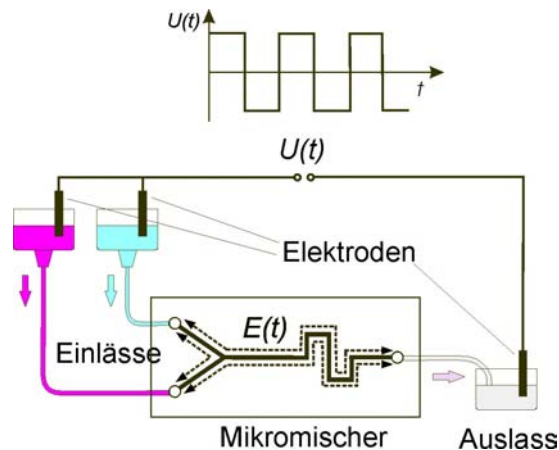


Abb. 2: Anordnung der Elektroden zum Aufbau des elektrischen Feldes.

Der komplette Mikromischer ist aus *FOTURAN* Glas in dreischichtiger Bauweise hergestellt. Dieses Glas erlaubt durch selektive Ätzung die Herstellung hochgenauer, in guter Näherung rechteckiger Kanäle. Die einzelnen Glasschichten von 1 mm , $110\ \mu\text{m}$ und 1 mm werden nach der Strukturierung durch Diffusion bei erhöhter Temperatur verschweißt. Alle Kanalquerschnitte sind $110 \times 110\ \mu\text{m}$, die Y-Zusammenführung schließt einen Winkel von 40° ein, der Mäander liegt 17 mm stromab vom Schnittpunkt der Einlasskanäle entfernt.

Zur Messung des Geschwindigkeitsfeldes verwenden wir die sog. „micro particle image velocimetry (μPIV)“, welche von Santiago et al. 1998 oder Meinhart et al. 1999 eingeführt ist. Im Detail beleuchten zwei Nd:YAG Laser über den coaxialen Beleuchtungs-Strahlengang eines Mikroskops das komplette Volumen des Mikrokanals mit grünem Licht. Fluoreszierende Partikel in der Strömung (sog. „microspheres“) emittieren rotes Licht und werden nach entsprechender Farbtrennung auf einer CCD-Kamera ($1376 \times 1040\text{ Pixel}$) abgebildet. So gelingt es zwei ungestörte Bilder der bewegten Partikel zu erhalten, welche mit Korrelationsverfahren bzgl. des Teilchenversatzes ausgewertet werden können. Abfragefenster von typisch $16 \times 16\text{ Pixel}$, sowie Volumenkonzentrationen im Bereich $0.06\text{-}0.07\%$, führen zu etwa 5 Partikeln pro Abfragefenster, was im Zusammenspiel mit einer Ensemble-Mittelung von 20-40 Kreuzkorrelationsfunktionen zuverlässige Messungen sicherstellt (vgl. Meinhart et al. 2000). Die Aufnahme der Bilder in der periodisch (langsam) oszillierenden Strömung geschieht durch die phasenkorrekte Triggerung anhand des Elektrodensignals. Der Zeitabstand zwischen zwei Bildern einer Kreuzkorrelation bleibt dabei stets kleiner als 10 ms . Im Gegensatz zum konventionellen PIV-Verfahren, in dem ein Lichtschnitt die Messebene definiert, wird beim μPIV -Verfahren die Tiefenschärfe und die Intensitätsverteilung der Beleuchtung genutzt um die „Messebene“ auszukoppeln. Nach Meinhart et al. 2000 kann die Dicke der „Messebene“ aus der Korrelationstiefe δz , gemäß

$$\delta z = \frac{3n\lambda_e}{NA^2} + \frac{2.16d_p}{\tan\theta} + d_p,$$

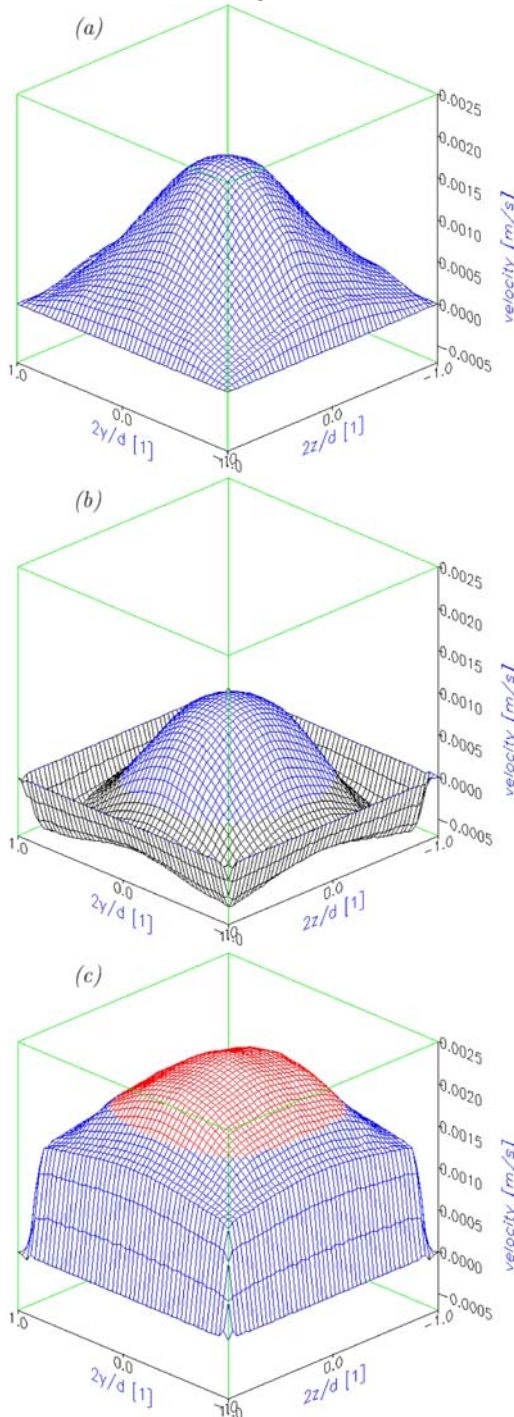
abgeschätzt werden. Hierin ist n der Brechungsindex des Mediums zwischen Mikrokanal und Objektiv, λ_e die Wellenlänge des emittierten Lichts, NA die numerische Apertur des Objektivs, d_p der Partikeldurchmesser und θ der Sammelwinkel des optischen Systems. In Tab. 1 sind die numerische Apertur und die Korrelationstiefe für die verwendeten Objektive (Vergrößerung M) zusammengefasst. Wir verwenden Partikel mit einem Durchmesser von 200 nm und 500 nm .

Tab. 1: Mikroskopobjektive, numerische Apertur und Korrelationstiefe für 200 nm Partikel.

M	NA	$\delta z [\mu m]$
20	0.40	12.7
40	0.60	6.0

Ergebnisse

In diesem Abschnitt diskutieren wir die Ergebnisse für das Geschwindigkeitsfeld ohne und mit elektrischer Erregung. Der Abschnitt ist unterteilt in (a) die Strömung im geraden Kanal und (b) die Strömung durch den Mäander.



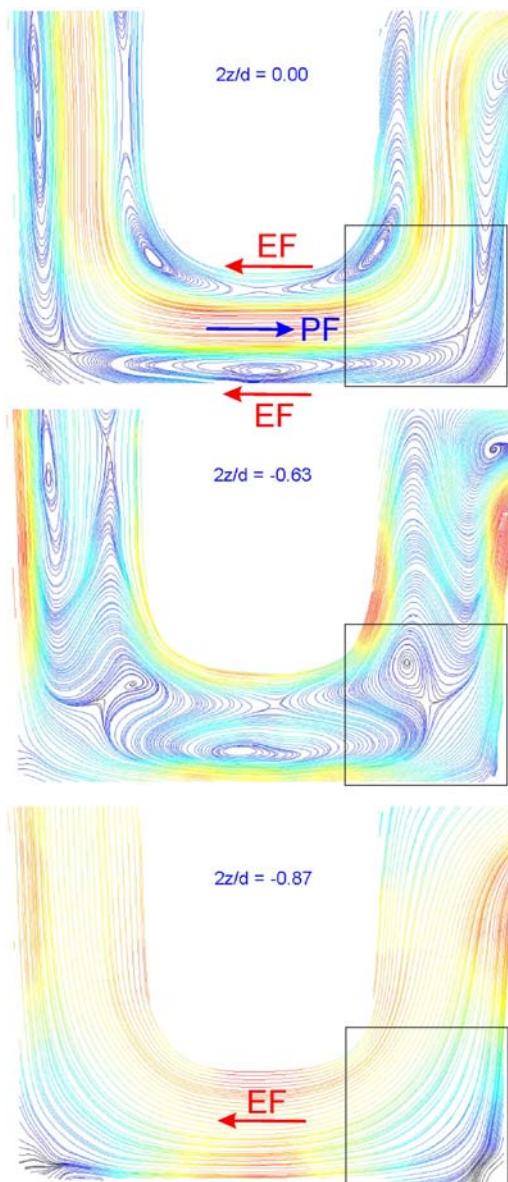
a) Die Strömung im geraden Kanal

Die Messungen sind im geraden Kanal, 15 mm stromab der Y-Zusammenführung, vor dem Mäander ausgeführt. Dort findet sich eine Strömung, die in guter Näherung weder von der Y-Zusammenführung noch vom Mäander beeinflusst ist. Das verwendete Objektiv und die verwendeten Partikel ($20\times$, 200 nm) liefern eine Korrelationstiefe von $\delta z \approx 12.7\ \mu m$. Wir vermessen den kompletten Kanalquerschnitt in 15 Ebenen im Bereich $-1 \leq 2z/d \leq 1$, sodass eine geringfügige Überlappung der „Messebenen“ (endlicher Dicke) vorliegt. In den einzelnen Messebenen werden Abfragefenster von $16 \times 16\text{ Pixel}$ ohne Überlappung verwendet, sowie jeweils 40 phasenrichtig aufgenommene Kreuzkorrelationsfunktionen gemittelt. Das Ergebnis für die axiale Geschwindigkeit ist in Abb. 3 zusammengefasst.

In Abb. 3a erkennen wir das Geschwindigkeitsprofil der durch den Druckgradienten angetriebenen Strömung. Das Profil erscheint in etwa parabolisch und in guter Näherung symmetrisch zu beiden Achsen. Die maximale Geschwindigkeit im Zentrum des Kanals ist etwa 1.7 mm/s . Diese Profil kann mit einer analytischen Reihenlösung für den Rechteckkanal verglichen werden (vgl. Müller & Bühler 2001). Wir finden hierbei eine gute Übereinstimmung mit der analytischen Lösung, bei Abweichungen von weniger als 3 % im kompletten Kanalquerschnitt. Es sollte hier beachtet werden, dass die Geschwindigkeit direkt auf der Wand mit einem endlichen Messvolumen aus prinzipiellen Gründen nicht gemessen werden kann. Aus diesem Grund wird die Geschwindigkeit auf der Wand manuell zu null gesetzt.

Abb. 3: Axiale Geschwindigkeitsprofile für die Strömung bei $Re \approx 0.1$ im geraden Kanal (a) ohne elektrisches Feld, (b) für ein elektrisches Feld von $E_x \approx -14.7\text{ V/mm}$ und (c) für ein elektrisches Feld von $E_x \approx +14.7\text{ V/mm}$.

Wird nun der druckgetriebenen Hauptströmung eine elektroosmotische Sekundärströmung überlagert, so wird der elektroosmotische Anteil aufgrund des alternierenden elektrischen Feldes gleichfalls alternierend sein. Während einer halben Periode ist deshalb das elektrische Feld in die negativen x -Richtung gerichtet, d.h. wir haben $E_x \cong -14.7 \text{ V/mm}$. Das Geschwindigkeitsfeld für diesen Zeitraum sehen wir in Abb. 3b. Wiederum erweist sich das Profil im Mittenbereich als etwa parabolisch und symmetrisch um beide Achsen. Aufgrund der gegengerichteten elektroosmotischen Strömung, finden wir negative Geschwindigkeiten in Wandnähe, während in der Kanalmitte eine positive Geschwindigkeit von bis 1.0 mm/s vorherrscht. Eine nähere Betrachtung zeigt stärkere elektroosmotische Effekte in den Ecken, im Vergleich zur Wandmitte. Dies ist vermutlich eine Folge der dickeren elektrischen Doppelschicht in den Ecken. Während der halben Periode mit $E_x \cong +14.7 \text{ V/mm}$ finden wir das Geschwindigkeitsprofil in Abb. 3c. Das (axiale) Geschwindigkeitsprofil bleibt in guter Näherung symmetrisch zu beiden Achsen und im Mittenbereich etwa parabolisch. Die elektroosmotisch Strömung weist nun im Bereich der Wände die gleiche Richtung wie die druckgetriebene Strömung auf. Dies führt zu einem starken Geschwindigkeitsanstieg über die elektrische Doppelschicht, sodass in Kanalmitte Geschwindigkeiten bis 2.4 mm/s auftreten. In Abb. 3 ist naturgemäß nur die kinematische Grenzschicht zu erkennen; die elektrische Doppelschicht ist deutlich dünner.



Es ist offensichtlich aus Abb. 3, dass das elektrische Feld zu einer Bewegung des Fluids in Wandnähe führt, wobei die Richtung von der Richtung des elektrischen Feldes bestimmt ist. Für das System Wasser/Glas sind negative Ladungen auf der Glaswand charakteristisch. Dies führt zu einer positiv geladenen Fluidschicht in Wandnähe, der sog. elektrischen Doppelschicht. Ein positiv gerichtetes elektrisches Feld induziert deshalb Kräfte auf die Ionen, welche in positive x -Richtung gerichtet sind. Die Auswertung der querschnittsgemittelten elektroosmotischen Geschwindigkeitsamplitude bei variiertem elektrischem Feld liefert

$$\frac{\bar{u}_{eo}}{E_x} \cong 4.9 \times 10^{-8} \frac{\text{m}^2}{\text{V s}},$$

einen linearen Zusammenhang. Hieraus kann ein Zeta-Potential von $\zeta \cong -68.1 \text{ mV}$ abgeschätzt werden, welches die elektrochemischen Gegebenheiten des Systems Wasser/Glas charakterisiert

b) Die Strömung durch den Mäander

Wir wollen nun die Strömung im ersten U-Bogen des Mäanders betrachten. Auch hier messen wir bei gleichen optischen und auswertetechnischen Parametern die Strömung im kompletten Kanalquerschnitt. Wir konzentrieren uns jedoch auf die halbe Periode, während der das elektrische Feld entgegen der druckgetriebenen Strömung gerichtet ist. Einige Ergebnisse hierzu sind in Form von Streichlinien in Abb. 4 zusammengefasst.

Abb. 4: Streichlinien der Strömung bei $Re \cong 0.1$ bei einem elektrischen Feld von $E_x \cong -14.7 \text{ V/mm}$ und in den Ebenen $2z/d = 0, -0.63, -0.87$. Die Richtung der druckgetriebenen Strömung (PF) und der elektroosmotischen Strömung (EF) sind durch Pfeile markiert.

Im horizontalen Mittenschnitt des Kanals ($2z/d = 0$) erkennen wir in Kanalmitte die druckgetriebene Hauptströmung durch den Mäander von links nach rechts (vgl. Pfeil PF). An den Wänden hingegen, ist die elektroosmotische Strömung entgegen der druckgetriebenen Strömung gerichtet (vgl. Pfeile EF). Aus diesem Grund findet sich eine Schicht von Mikrowirbeln zwischen beiden Zonen. Die Strömung und die Wirbel erscheinen in guter Näherung symmetrisch zur Symmetrielinie des U-Bogens. Bewegen wir uns nun in Richtung des Kanalbodens (vgl. $2z/d = -0.63$), so wird die druckgetriebene Strömung schwächer bis schließlich bei $2z/d = -0.87$ keine Anzeichen der druckgetriebenen Strömung mehr zu erkennen sind. Stattdessen finden wir nahe des Kanalbodens eine Strömung von rechts nach links (vgl. Pfeil EF). Dies ist die elektroosmotische Strömung, welche natürlich auch am Kanalboden induziert wird. Zusammenfassend ist die Strömung im Kanalzentrum durch die druckgetriebene Hauptströmung bestimmt, während nahe aller Wänden die umgekehrt gerichtete elektroosmotische Sekundärströmung das Geschehen kontrolliert.

Die Topologie der Strömung kann aus Symmetriegründen etwa durch die Gegebenheiten innerhalb eines einzelnen Krümmers (vgl. Rechteck in Abb. 4) charakterisiert werden. Diese Topologie bei $2z/d = 0$ ist in Abb. 5 schematisch dargestellt. Wir erkennen einen Wirbelpunkt in der oberen linken Ecke des Krümmers und einen Sattelpunkt in der unteren rechten Ecke. Aus den Messungen in verschiedenen Ebenen können diese singulären Punkte in den Messebenen identifiziert und verfolgt werden. Daraus ergibt sich eine Wirbellinie und eine Sattellinie im Raum, welche in Abb. 6 dargestellt sind.

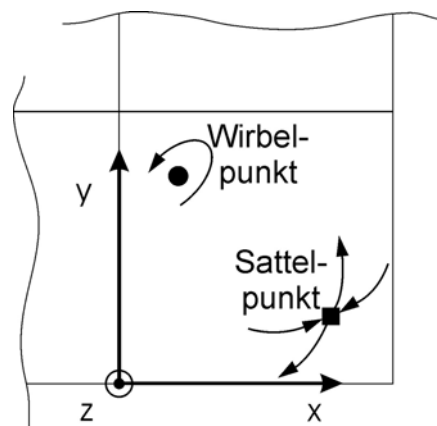


Abb. 5: Topologie der Strömung im Einzelkrümmer.

Wir erkennen, dass sowohl der Wirbelpunkt (gefüllte Kreise) als auch der Sattelpunkt (gefüllte Quadrate), ausgehend von der Mittenebene, nach innen wandern, bis beide für $|2z/d| > 0.63$ gänzlich verschwinden. Diese Verschiebung der Wirbel- und Sattelpunkte nach innen entsteht aufgrund der Verdickung der Schicht von Wirbeln bei Annäherung an die Boden- bzw. Deckenwände des Kanals. Das Verschwinden der singulären Punkte nahe der Boden- bzw. Deckenwand ist eine Folge der Orientierung der Messebene: in der Nähe dieser Wände sind die Wirbel parallel zur Messebene ausgerichtet und können deshalb nicht detektiert werden. Es ist natürlich zu erwarten, dass etwa Wirbellinien im Strömungsgebiet geschlossen sind. Dies scheint hier auf den ersten Blick nicht gegeben. Dies hängt allerdings wiederum mit der fehlenden Information über die Wirbelpunkte nahe der Boden- und Deckenwand zusammen. Es sind diese Bereiche, in denen ein Schließen der Wirbellinien zu erwarten ist.

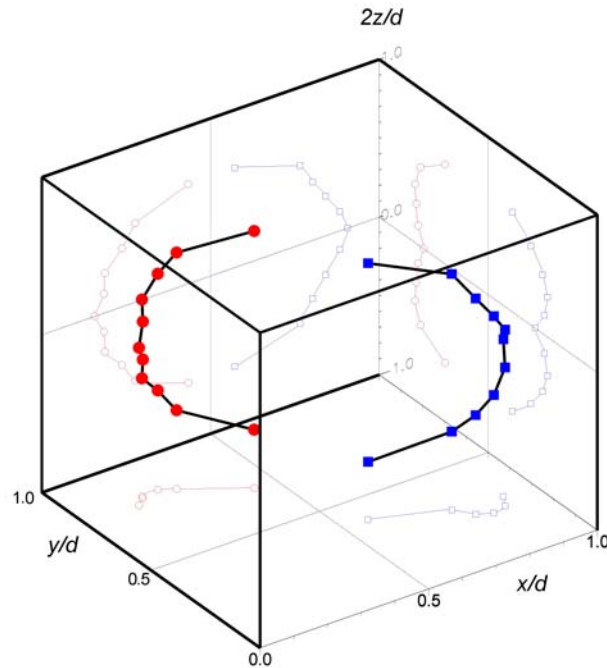


Abb. 6: Wirbellinie und Sattellinie im Einzelkrümmen.

Literatur

- Liu, R., Stremler, A., Sharp, K., Olson, M., Santiago, J., Adrian, R., Aref, H., Beebe, D., 2000: „Passive mixing in a three-dimensional serpentine microchannel”, *J. Microelectromech. Systems* **9**, pp.190-197.
- Matsumoto, R., Farangis Zadeh, H., Ehrhard, P., 2005: „Quantitative measurement of depth-averaged concentration fields in microchannels by means of a fluorescence intensity method”, *Exp. Fluids*, in press.
- Meinhart, C., Wereley, S., Gray, M., 2000: „Volume illumination for two-dimensional particle image velocimetry”, *Measurement Sci. Technol.* **11**, pp. 809-814.
- Meinhart, C., Wereley, S., Santiago, J., 1999: „PIV measurements of a microchannel flow”, *Exp. Fluids* **27**, pp. 414-419.
- Meisel, I., Ehrhard, P., 2005: „Electrically-excited (electroosmotic) flows in microchannels for mixing applications“, *Eur. J. Mech. B / Fluids*, in press.
- Müller, U., Bühler, L., 2001: „Magnetofluidynamics in channels and containers“, Springer, Berlin.
- Qian, S., Bau, H., 2002: „A chaotic electroosmotic stirrer”, *Anal. Chem.* **74**, pp. 3616-3625.
- Santiago, J., Wereley, S., Meinhart, C., Beebe, R., Adrian, R., 1998: „A particle image velocimetry system for microfluidics”, *Exp. Fluids* **25**, pp. 316-319.
- Stroock, A., Dertinger, S., Ajdari, A., Mezić, I., Stone, H., Whitesides, G., 2002: „Chaotic mixer for microchannels”, *Science* **295**, pp. 647-651.
- Yamagushi, Y., Takagi, F., Yamashita, K., Nakumura, H., Maeda, H., Sotowa, K., Kusakabe, K., Yamasaki, Y., Morooka, S., 2004: „3-D simulation and visualization of laminar flow in a microchannel with hair-pin curves”, *AIChE J.* **50**, pp. 1530-1535.
- Yi, M., Qian, S., Bau, H., 2002: „A magnetohydrodynamic chaotic stirrer”, *J. Fluid Mech.* **468**, pp. 153-177.