



Forschungszentrum Karlsruhe
in der Helmholtz-Gemeinschaft

Wissenschaftliche Berichte
FZKA 7228

Numerische Simulation eines elektroosmotischen Mikromischers

K. Boettcher, D. Barz

Institut für Kern- und Energietechnik

September 2006

Forschungszentrum Karlsruhe

in der Helmholtz-Gemeinschaft

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 7228

Numerische Simulation eines elektroosmotischen
Mikromischers

Konrad Boettcher, Dominik Barz

Institut für Kern- und Energietechnik

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

2006

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft
Deutscher Forschungszentren (HGF)

ISSN 0947-8620

urn:nbn:de:0005-072285

Numerische Simulation eines elektroosmotischen Mikromischers

Der Gegenstand dieser Arbeit ist die numerische Simulation eines elektrisch erregten Mikromischers, welcher in das „lab-on-a-chip“-Konzept integriert werden kann. Dazu wird einer druckgetriebenen Strömung ein oszillierendes elektrisches Feld überlagert. Das elektrische Feld induziert eine elektroosmotische Strömung, die idealerweise quer zur Hauptströmungsrichtung angeordnet ist. Dies vergrößert die Kontaktfläche zwischen den zu mischenden Flüssigkeiten, so dass ein effizienterer Stoffaustausch stattfinden kann. Das Prinzip wird auf verschiedene Geometrien übertragen und deren Eignung anhand der errechneten Konzentrationsfelder bewertet.

Numerical simulation of an electroosmotic micromixer

The subject of the present article is a numerical simulation of an electrical excited micromixer, which is supposed to be integrated in a „lab-on-a-chip“-concept. For that purpose an electrical field is superposed to a pressure driven flow. The electrical field induces an electroosmotic flow, which is ideally applied transverse to the main flow direction. This increases the contact layer between the liquids, which have to be mixed. Due to this the mass transfer is taking place more efficiently. This principle is transferred to various geometries. Then, their suitability is evaluated by means of the simulated mixing quantities.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Motivation	1
1.2	Mischen bei kleinen Reynolds-Zahlen	3
2	Grundlagen	5
2.1	Potentialverteilung in dielektrischen Medien	5
2.2	Die elektrische Doppelschicht	6
2.3	Modellierung der EDL	7
2.3.1	Mathematische Beschreibung der EDL	9
2.4	Elektrokinetische Effekte in der Mikrofluidik	14
2.5	Grundgleichungen	17
2.6	Stofftransport	18
3	Numerik	19
3.1	Numerisches Verfahren	19
3.2	Entdimensionierung und asymptotische Anpassung	20
4	Numerische Simulation eines geraden Kanals und ein Vergleich mit einem Experiment	23
4.1	Numerische Simulation	24
4.2	Vergleich der Simulation mit der asymptotischen Lösung	27
4.3	Vergleich der Simulation mit dem Experiment	28

5	Mikromischer	30
5.1	Simulation eines existierenden Mikromischers	30
5.2	Ergebnisse der Simulation	33
5.3	Einfluss der Frequenz auf den Verlauf der Isokonzentrationslinie	38
5.4	Weitere Einflüsse auf die Vermischung	41
5.4.1	Geometrien und örtliche Diskretisierungen	42
5.4.2	Potentialverteilung	43
5.4.3	Geschwindigkeitsverteilungen und Stromlinien	44
5.4.4	Die Konzentrationsverteilungen	46
5.4.5	Bewertung der Vermischung	48
5.5	Der Einfluss des Geschwindigkeitsprofils	54
6	Zusammenfassung und Ausblick	58
7	Anhang	61
7.1	Analytische Lösung des Stofftransportes mit Diffusion und Konvektion . . .	62
7.2	Analytische Lösung des Stofftransportes mit Diffusion	63
7.3	Vergleich zwischen analytischer und numerischer Lösung	64
7.3.1	Diffusion	64
7.3.2	Diffusion und Konvektion	65
7.4	Vergleich zwischen Netzstrukturen bei komplexeren Geometrien	66
7.5	Mischgüte Γ	67
7.6	Verwendeter Rechner	69
	Literaturverzeichnis	70

Symbolverzeichnis

Abkürzungen

EDL	Elektrische Doppelschicht
EOF	Elektroosmotische Strömung
DGL	Differentialgleichung
DNS	Desoxyribonukleinsäure
FEM	Finite-Elemente-Methode
FDM	Finite-Differenzen-Methode
FVM	Finite-Volumen-Methode
LOC	Lab-on-a-chip
MEMS	Micro-electro-mechanical-systems
PDF	Druckgetriebene Strömung
PDMS	Polydimethylsiloxan
pH	Pondus Hydrogenii, negativer dekadischer Logarithmus der Hydroniumionenkonzentration
PCR	Polymerasekettenreaktion
PIV	Particle-image-velicometry
POCT	Point-of-care-testing
Pt	Platin
μ TAS	Mirco-total-analysis-system

Lateinische Buchstaben

a	[-]	Chemische Aktivität
A_i	[-]	Integrationskonstanten
c	$[\frac{mol}{dm^3}]$	Konzentration
C	[-]	Entdimensionierte Konzentration
c_i	$[\frac{mol}{dm^3}]$	Spezifische Konzentration der i -ten Ionensorte
c_i^∞	$[\frac{mol}{dm^3}]$	Spezifische Konzentration der i -ten Ionensorte unter Standardbedingungen
c_n	$[\frac{mol}{dm^3}]$	Spezifische Konzentration des n -ten Elementes
c_{opt}	$[\frac{mol}{dm^3}]$	Optimale spezifische Konzentration

C_{opt}	[-]	Entdimensionierte optimale Konzentration
D	$[\frac{m^2}{s}]$	Diffusionskonstante
d_0	$[m]$	Kanalweite
\vec{D}_{dV}	$[\frac{C}{m^2}]$	Dielektrische Verschiebung
dT	[-]	Dimensionslose Zeitschrittweite
\vec{E}	$[\frac{V}{m}]$	Elektrisches Feld
\vec{E}_{ind}	$[\frac{V}{m}]$	Selbstinduziertes elektrisches Feld
f	$[Hz]$	Frequenz
F	[-]	Entdimensionierte Frequenz
h	$[m]$	Höhe
i	[-]	Zählvariable für die i -te Ionensorte
J_n	$[\frac{m^3}{s}]$	Volumenfluss im n-ten Element
\bar{J}	$[\frac{m^3}{s}]$	Mittlerer Volumenfluss über der Kanalweite
\vec{k}	$[\frac{m}{s^2}]$	Volumenkraft pro Masseneinheit
\vec{K}	[-]	Entdimensionierte Volumenkraft pro Masseneinheit
l	$[m]$	Länge
L	[-]	Entdimensionierte Länge
L^*	[-]	Gewichtete entdimensionierte Kontaktflächenlänge
$l_{Einlauf}$	$[m]$	Einlaufänge
l_D	$[m]$	Debye-Länge
m	[-]	Anzahl der Elemente über der Kanalweite
n	[-]	Zählvariable
p	$[Pa]$	Druck
P	[-]	Entdimensionierter Druck
q	$[\frac{C}{m^3}]$	Ladungsdichte
$q\zeta$	$[\frac{C}{m^2}]$	Scheinbare Wandladungsdichte
s	[-]	Integrationsparameter
t	$[s]$	Zeit
T	[-]	Entdimensionierte Zeit
(u, v)	[-]	Geschwindigkeitskomponenten in (x,y)-Richtung
(u, v)	[-]	Geschwindigkeitskomponenten in (x,y)-Richtung
(U, V)	[-]	Entdimensionierte Geschwindigkeitskomponenten in (X,Y)-Richtung
(U_K, V_K)	[-]	Entdimensionierte Geschwindigkeitskomponenten in der Kernströmung
$(\tilde{U}_W, \tilde{V}_W)$	[-]	Scheinbare entdimensionierte Wandgeschwindigkeiten

\bar{v}	$[\frac{m}{s}]$	Mittlere Geschwindigkeit
\vec{v}	$[\frac{m}{s}]$	Geschwindigkeitsvektor
(x, y)	$[m]$	Koordinatenrichtungen
(X, Y)	$[-]$	Entdimensionierte Koordinatenrichtungen
z_i	$[-]$	Spezifische Ladungszahl (Valenzzahl) der i -ten Ionensorte

Griechische Buchstaben

α	$[^\circ]$	Winkel zwischen den Eingangskanälen eines Mischers
δp	$[Pa]$	Druckverlust durch Expansion und Kontraktion
Δ	$[-]$	Unterschied, Differenz, Laplace-Operator
ϵ_r	$[-]$	Relative Permittivität
∇	$[-]$	Nabla-Operator
φ	$[V]$	Elektrisches Potential
φ_0	$[V]$	Charakteristisches Potential
φ_O	$[V]$	Elektrisches Oberflächenpotential
φ_{Stern}	$[V]$	Sternpotential
Φ	$[V]$	Entdimensioniertes elektrisches Potential
γ	$[-]$	Variable für Exponentialansatz zum Lösen von Differentialgleichungen
Γ	$[-]$	Mischgüte
κ	$[m^{-1}]$	Debye-Hückel-Parameter
λ	$[m]$	Wellenlänge einer sinusförmigen Grenzfläche
μ	$[Pa \cdot s]$	Dynamische Viskosität
$\bar{\mu}_i$	$[\frac{J}{mol}]$	Elektrochemisches Potential der i -ten Ionensorte
μ_i	$[\frac{J}{mol}]$	Chemisches Potential der i -ten Ionensorte
μ_i^∞	$[\frac{J}{mol}]$	Chemisches Potential der i -ten Ionensorte unter Standardbedingungen
ν	$[\frac{m^2}{s}]$	Kinematische Viskosität
ψ	$[-]$	DGL-Parameter

ρ	$[\frac{Kg}{m^3}]$	Dichte
σ	$[\frac{1}{\Omega m}]$	Elektrische Leitfähigkeit
τ	[-]	Separierte Teilfunktion der Zeit
ϑ	[K]	Temperatur
ξ	[-]	Separierte Teilfunktion des Ortes
ζ	[V]	Zetapotential

Andere

\aleph	[-]	Kapazitätskonstante
----------	-----	---------------------

Indizes

\diamond	Maximalwert einer Größe
\diamond_0	Charakteristischer Wert für die betreffende Größe
\diamond_{25mV}	Größe bezogen auf eine angelegte Spannung von $25mV$
\diamond_{EDL}	Größe bezogen auf die elektrische Doppelschicht
\diamond_{EOF}	Größe bezogen auf eine elektroosmotische Strömung
\diamond_{ε}	Größe bezogen auf einen ε -förmigen Mischer
\diamond_{H_2O}	Größe bezogen auf Wasser
$\diamond_{konvektiv}$	Konvektiver Anteil einer Größe
\diamond_{lokal}	Lokaler Anteil einer Größe
\diamond_n	Zählindex
\diamond_{PDF}	Größe bezogen auf eine druckgetriebene Strömung
\diamond_{ψ}	Funktion in Abhängigkeit eines konstanten Parameters
\diamond_T	Differentiation nach entdimensionierter Zeit
$\diamond_{\underline{T}}$	Größe bezogen auf einen T-förmigen Mischer
$\diamond_{(x,y)}$	Differentiation nach den Koordinatenrichtungen (x,y)
$\diamond_{(\vec{x},\vec{y})}$	(x,y)-Komponente eines Vektors
$\diamond_{(X,Y)}$	Differentiation nach den entdimensionierten Koordinatenrichtungen (X,Y)
$\diamond_{\underline{Y}}$	Größe bezogen auf einen Y-förmigen Mischer

Konstanten

e	$=$	$1,602176462 \cdot 10^{-19} C$	Elementarladung
ε_0	$=$	$8,854187817 \cdot 10^{-12} \frac{F}{m}$	Permittivitätskonstante des Vakuums
\mathcal{F}	$=$	$96485,3 \frac{C}{mol}$	Faraday-Konstante
g	$=$	$9,80665 \frac{m}{s^2}$	Normfallbeschleunigung
π	$=$	$3.1415926535897932\dots$	Kreiszahl; Fläche eines Kreises mit dem Radius 1
R	$=$	$8,31 \frac{J}{K \cdot mol}$	Ideale Gaskonstante

Kennzahlen

CFL	$=$	$u \cdot \frac{\Delta t}{\Delta x}$	Courant-Friedrichs-Lewy-Zahl
Pe	$=$	$\frac{1}{Re \cdot Sc}$	Peclet-Zahl
Re	$=$	$\frac{\rho u_0 d_0}{\mu}$	Reynolds-Zahl
Sc	$=$	$\frac{\nu}{D}$	Schmidt-Zahl
Str	$=$	$\frac{u_{0,lokal} \cdot f_0 \cdot d_0}{u_{0,konvektiv}^2}$	Strouhal-Zahl

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Motivation

Die technologische Entwicklung der letzten Jahrzehnte ist geprägt von der Miniaturisierung elektronischer Bauteile und den damit verbundenen Fortschritten im Bereich der Informationstechnologie. Dadurch wurden auch Technologien beeinflusst, die nicht zum Bereich der Informationstechnologie gehören. So wird das Konzept der Miniaturisierung heute konsequent auch auf andere Gebiete übertragen, z.B. auf mechanische und fluidmechanische Bauteile.

Dies wurde erst durch große Fortschritte in der Mikrofertigungstechnik wie bspw. der Lithografie, Mikrozerspanen, Silizium-Mikromechanik oder der Laser-Mikromaterialbearbeitung ermöglicht. Mit Hilfe dieser Verfahren können Bauteile mit Abmessungen im Mikrometerbereich präzise hergestellt werden. Die Kombination von Mikrokomponenten aus verschiedenen Anwendungsbereichen (wie z.B. Mikrooptik, Mikrofluidik, Mikromechanik, Mikroelektronik) wird dabei als Mikrosystemtechnik oder MEMS (micro-electro-mechanical-systems) bezeichnet. Diese Komponenten stehen in Wechselwirkung zueinander und sind als Gesamtsystem auf engem Raum für eine oder mehrere spezielle Funktionen optimiert (Guber 2004). Da diese Technologie für eine Vielzahl enorm wichtiger und wachstumsstarker Anwendungsgebiete, wie z.B. in der Medizintechnik, der Umwelttechnik, den Lebenswissenschaften (Life-Sciences), der Luft- und Raumfahrt (Boen 2004), der Verfahrenstechnik und der Sicherheitstechnik in Betracht kommt, wird sie als eine Schlüsseltechnologie des neuen Jahrhunderts gesehen. Die Gründe der Miniaturisierung liegen neben der Notwendigkeit von kleinen Bauteilen wie in der Neurochirurgie vor allem darin, dass die Effizienz durch das Zusammenschalten mehrerer Komponenten gesteigert werden kann. Gleichzeitig können die Produktionskosten gesenkt werden, indem im sogenannten Batch-Verfahren viele Komponenten parallel gefertigt werden (Guber 2004). Ein wichtiger Aspekt der Mikrosystemtech-

nik ist neben der Systemintegration verschiedener Techniken ein Brückenschlag zwischen Makro-, Mikro- und Nanowelt, dh. die Nanotechnik kann oft nur mithilfe der Mikrotechnik genutzt werden (BMBF 2004).

Durch eine intelligente Integration der einzelnen Mikrokomponenten sollen viele Arbeitsschritte in einem Labor wie Probenaufbereitung und -handling, Probentransport, Reaktion, Separation, Detektion, usw. völlig automatisiert durchgeführt werden können. In diesen Miniaturlaboren können sowohl Polymerasekettenreaktionen (PCR) ablaufen als auch Proteine und DNS elektrophoretisch getrennt werden. Damit können sie u.a. zur Detektion von z.B. Viren und Bakterien, zur Entwicklung neuer Medikamente und zur Entschlüsselung eines Genoms oder Proteoms eingesetzt werden (BMBF 2004).

Die Miniaturisierung von Laboren bietet dabei eine Reihe von Vorzügen gegenüber Laboren konventioneller Größe. Sie werden dabei als LOC (lab-on-a-chip) oder μ TAS (miniaturised-total-analysis-system) bezeichnet. Zum Durchführen von Analysen werden nur sehr kleine Stoffmengen im Nano- oder Pikoliterbereich benötigt, wodurch auch der Verbrauch an teurem Probenmaterial gesenkt werden kann. Dadurch werden auch Probleme entschärft, die durch toxische Reagenzien oder stark exotherme Reaktionen auftreten können. Da bei kleiner werdenden Stoffmengen das Verhältnis von Oberfläche zu Volumen zunimmt, wird auch eine thermische Prozesskontrolle erleichtert. Die Reduzierung des Probenmaterial senkt zudem die Reaktions- und Analysezeit (Weissgerber und Glatz 2003). Die kleinen Abmessungen der LOC- oder μ TAS-Systeme führen weiterhin zu einer hohen Portabilität. Diese birgt besonders für Länder mit schlechter medizinischer Infrastruktur den Nutzen, dass die Probe nicht mehr zu einem weit entfernten Labor gebracht werden muss, sondern das Labor direkt dort eingesetzt werden kann, wo es benötigt wird (POCT – point-of-care-testing). Das POCT ist aber auch bei zeitkritischen klinischen Analysen (z.B. Notfallparameter) hilfreich. Durch den Einsatz der neuen Technik können auch Fehlerquellen ausgeschaltet und Arbeitszeit eingespart werden, da viele Arbeitsschritte automatisch im Mikrolabor ablaufen. Aufgrund der geringen Abmessungen eines LOC ist es möglich, mehrere Miniaturlabore auf einem Chip (bzw. auf einer Mikrotiterplatte oder auf einer CD) unterzubringen. Dies erleichtert eine weitere Automatisierung, bei der Analysen parallel durchgeführt werden können. Das führt zu einer Beschleunigung von Serienuntersuchungen (High-Throughput-Screening-Prozesse) (Gerlach und Guber 2002),(BMBF 2004). Dies ist insbesondere dann wertvoll, wenn sehr viele identische Analyseschritte durchgeführt werden müssen, wie bei der Entschlüsselung eines Proteoms. Die Kostenersparnis durch Einsatz der LOC-Technik erbringt der Pharmaindustrie einen entscheidenden Nutzen, da die Entwicklung eines neuen Medikamentes bis zu 500 Mio. € kostet und bis zu 12 Jahren dauern kann. Dieser enorme finanzielle und zeitliche Aufwand lässt selbst Großkonzerne nach nur wenigen nicht zugelassenen Medikamenten an ihre finanziellen Grenzen stoßen (BMBF 2004).

1.2 Mischen bei kleinen Reynolds-Zahlen

Ein notwendiger Prozess der auf einem μ TAS oder LOC realisiert werden muss (bspw. für die PCR) ist eine homogene und schnelle Vermischung zweier oder mehrerer Reagenzien (BMBF 2004). Das Mischen kann in zwei Teilprozesse gegliedert werden: (i) der Vergrößerung der Kontaktfläche und (ii) dem eigentlichen Mischvorgang durch Stoffdiffusion (Meisel 2004). Die Vergrößerung der Kontaktfläche begünstigt dabei den auf Diffusion beruhenden Stoffaustausch. In makroskopischen Dimensionen kann die turbulente Strömungsform zur Vergrößerung der Kontaktfläche genutzt werden. Da in mikroskopischen Dimensionen kleine Reynolds-Zahlen und damit laminare Strömungen vorliegen, gestaltet sich das Mischen jedoch als schwierig. Neben der Beeinflussung der Kontaktfläche dient zusätzlich die Verweilzeit als Parameter. Wird bspw. anstatt eines geraden Mikrokanals ein gekrümmter (mäanderförmiger) Kanal verwendet, erhöht sich gleichzeitig die Verweilzeit (Mischzeit). Dies wirkt aber den Vorteilen einer kurzen Analysezeit und kleiner Abmessungen entgegen. In der Vergangenheit wurden daher verschiedene Funktionsprinzipien untersucht, die das Mischen verbessern sollen (Guber 2004). Prinzipiell kann dabei zwischen aktiven und passiven Mischern unterschieden werden. Bei aktiven Mischern wird dabei extern in Strömung eingegriffen und bei passiven Mischern wird die Strömung durch eine bestimmte Geometrie beeinflusst. Einige Funktionsweisen sind:

- Das Einbringen von externer Energie um die Kontaktfläche zu vergrößern (bspw. mechanisch (Lu, Ryu und Liu 2002), elektrisch (Meisel 2004), akustisch (Yang, Matsumoto, Goto, Matsumoto und Maeda 2001),...),
- Das Ausnutzen von Instabilitäten (Oddy, Santiago und Mikkelsen 2001),
- Das Aufteilen und Zusammenführen von Flüssigkeitsanteilen durch eine geometrische Formgebung (Multilamination) (Schwesinger, Frank und Wurmus 1996),
- Das Ausnutzen von Dean-Wirbel, die in gekrümmten Geometrien durch Zentrifugalkräfte entstehen (Yi und Bau 2003).

Wird eine der ersten beiden Funktionsweisen verwendet, handelt es sich um einen aktiven Mikromischer. Die letzten beiden Funktionsweisen sind hingegen typisch für passive Mikromischer. Jedoch zeigen nicht alle Prinzipien brauchbare Ergebnisse auf oder sie sind mit anderen Nachteilen behaftet. So sind bspw. die multilaminaren Mischer (Split&Recombine) aufwendig herzustellen und damit teuer (Guber 2004). Ein mechanisches Rühren hat den gleichen Nachteil, zusätzlich ist die Rührvorrichtung fehleranfällig (durch dessen bewegliche Teile) und nur schwer zu realisieren. Ein vielversprechender Weg ist die Vergrößerung

der Kontaktfläche durch das Induzieren einer Sekundärströmung mit Hilfe der Elektroosmose. Diese Methode lässt sich mit einfachen Mitteln realisieren. Dazu werden Elektroden in Kontakt mit den zu mischenden Fluiden gebracht. An die Elektroden wird eine periodisch wechselnde Spannung angelegt. Das dadurch entstehende elektrische Feld zwischen den Elektroden induziert eine oszillierende Sekundärströmung, die idealerweise quer zur Hauptströmungsrichtung verläuft. Dadurch wird die Kontaktfläche vergrößert, wodurch der Stoffaustausch über eine größere Fläche stattfinden kann. Dies bewirkt eine Erhöhung des Stoffaustausches in Auslaufrichtung.

In dieser Arbeit wird die Strömung, das zugrunde liegende elektrische Feld und das Konzentrationsfeld eines elektroosmotischen Mikromischers numerisch simuliert und der Einfluss verschiedener Geometrien betrachtet. Zur Lösung der dimensionslosen, instationären und zweidimensionalen Erhaltungsgleichungen (Kontinuität, Impulserhaltungs- und Stofftransportgleichungen) wird ein Finite-Elemente-Programm verwendet (*Fidap* 8.7.2). Dazu werden in Kapitel 2 die theoretischen Grundlagen erläutert und im dritten Kapitel die Netzerstellung. In Kapitel 4 wird zunächst eine elektroosmotische Strömung in einem geraden Kanal behandelt und die Ergebnisse mit experimentellen Daten von (Matsumoto, Toki, Ishihara und Ehrhard 2005) verglichen. Anschließend wird in Kapitel 5 sowohl der Einfluss der Mischergeometrie bei einer konstanten Frequenz auf die Mischungsgüte untersucht, als auch der Einfluss des Geschwindigkeitsprofils im Auslaufkanal auf die Mischungsgüte. Die Ergebnisse werden im 6. Kapitel zusammengefasst und es wird ein Ausblick auf mögliche zukünftige Anstrengungen gegeben.

Kapitel 2

Grundlagen

In mikrofluidischen Strukturen, wie z.B. einem lab-on-a-chip (LOC) kann eine Flüssigkeit durch elektrische Felder zu einer Bewegung veranlasst werden. Dies stellt eine einfache Antriebsmöglichkeit in der Mikrofluidik dar. Zu deren Modellierung ist die Kenntnis einiger Grundlagen nötig, wie z.B. die der elektrischen Potentialverteilung in der Flüssigkeit. Da in Geometrien mit mikroskopischen Abmessungen das Verhältnis von Oberfläche zu Volumen signifikant größer ist als im makroskopischen Maßstab, können in der Mikrofluidik Oberflächeneffekte einen großen Einfluss ausüben. Der für eine elektroosmotische Erregung eines Fluids wichtige Oberflächeneffekt ist die Ausbildung eines Ladungsüberschusses in der näheren Umgebung der Kanalwand. Dabei wandern Ionen einer bestimmten Ladung aus der elektrisch neutralen Flüssigkeit in den Festkörper. Dieser Oberflächeneffekt der Ladungstrennung wird als elektrische Doppelschicht (electrical double layer, EDL) bezeichnet. In diesen Systemen werden nur Flüssigkeiten mit konstanter Konzentration an leitfähigen Stoffen verwendet. Die Verteilung des elektrischen Potentials kann daher wie in einem dielektrischen Medium behandelt werden.

2.1 Potentialverteilung in dielektrischen Medien

Wird eine elektrische Potentialdifferenz an ein dielektrisches Medium (z.B. Gase, organische Flüssigkeiten, ...) angelegt, wird die Verteilung des Potentials durch die Polarisierung des Mediums beeinflusst. Dabei wird mit Polarisierung das Verschieben und die Orientierung von Molekülen im elektrischen Feld bezeichnet. Eine mathematische Beschreibung kann über die Erhaltung der dielektrischen Verschiebung gefunden werden, die durch das Gauß-Gesetz beschrieben ist (Hunter 1981):

$$\nabla \cdot \vec{D}_{dV} = q. \quad (2.1)$$

Dabei ist der Quellterm die Ladungsdichte q und \vec{D}_{dV} ist die sogenannte dielektrische Verschiebung, welche über die elektrische Potentialverteilung φ folgendermaßen beschrieben werden kann:

$$\vec{D}_{dV} = -\varepsilon_r \varepsilon_0 \nabla \varphi. \quad (2.2)$$

Dabei wird die Permittivitätskonstante des Vakuums mit ε_0 bezeichnet. Die relative Permittivität ε_r ist eine Stoffeigenschaft und charakterisiert die Durchlässigkeit der Materie für das elektrische Feld. Dabei ist ε_r abhängig von der Zusammensetzung des dielektrischen Materials, der Frequenz des elektrischen Feldes (Dispersion), von dessen Stärke, sowie von der Temperatur (Gerthsen 1999). Für Wasser und wässrige Lösungen ist bei Raumtemperatur ($\vartheta = 293K$) die relative Permittivität $\varepsilon_{r,H_2O} \approx 80$. Eine Kombination von (2.1) und (2.2) ergibt unter der Annahme einer konstanten relativen Permittivität ε_r die Poisson-Gleichung, welche die Verteilung des elektrischen Potentials in einem dielektrischen Medium beschreibt:

$$\Delta \varphi = -\frac{q}{\varepsilon_r \varepsilon_0}. \quad (2.3)$$

Liegen keine überschüssigen Ladungen vor (d.h. die Ladungsdichte q ist null) wie bspw. in reinen organischen Flüssigkeiten oder in elektrisch neutralen wässrigen Lösungen, vereinfacht sich die Poisson-Gleichung (2.3) zur Laplace-Gleichung:

$$\Delta \varphi = 0. \quad (2.4)$$

Die Potentialverteilung in einer wässrigen Lösung lässt sich bei einem äußeren, angelegten elektrischen Feld mit der Laplace-Gleichung (2.4) beschreiben. Ist die Verteilung des Potentials φ bekannt, kann über den Zusammenhang

$$\vec{E} = -\nabla \varphi \quad (2.5)$$

das zugehörige elektrische Feld \vec{E} bestimmt werden.

2.2 Die elektrische Doppelschicht

Eine elektrische Doppelschicht (EDL) beschreibt einen Effekt, der sich an der Grenzfläche eines Feststoffes in Kontakt mit einer Flüssigkeit ausbilden kann. In der Regel weist eine Grenzfläche eines Festkörpers eine elektrische Oberflächenladung und damit ein Oberflächenpotential φ_O auf. Die Existenz der Oberflächenladungen kann dabei verschiedene Ursachen haben. Mögliche physiochemische Phänomene sind bspw. eine bevorzugte Adsorption eines bestimmten Ionentyps aus der wässrigen Lösung an die Wand, Gitterfehler oder die Ionisation von Oberflächengruppen. Die Dissoziation saurer Gruppen auf einer

Oberfläche (z.B. $-\text{COOH}$), resultiert dabei in einer negativ geladenen Oberfläche (COO^-) und einem Proton (H^+) in der wässrigen Lösung). Basische Gruppen (z.B. $-\text{OH}$) resultieren zu einer positiv geladenen Oberfläche und ein Hydroxidion (OH^-) in der wässrigen Lösung. Das Oberflächenpotential φ_O ist hierbei auch von dem pH-Wert abhängig. Bei sauren Gruppen sinkt die Oberflächenladung bei sinkendem pH-Wert, bei basischen Gruppen ist dies umgekehrt. Damit können z.B. die meisten Metalloxide, abhängig vom pH-Wert der Lösung, sowohl positive als auch negative Oberflächenladungen aufweisen (Li 2004).

Bei Kontakt einer solchen geladenen Oberfläche mit einer Flüssigkeit, die bewegliche Ladungsträger (Ionen) enthält, werden die Ionen aus der Flüssigkeit angezogen. Dabei handelt es sich um sogenannte Gegenionen, welche die entgegengesetzte Ladung der Wand aufweisen. Diejenigen Ionen, deren Ladung das gleiche Vorzeichen wie die Wandladungen hat, werden Koionen genannt. Durch die elektrostatische Anziehung ist die Konzentration der Gegenionen nahe der Wand höher als in der restlichen Flüssigkeit. Gleichzeitig ist die Konzentration der Koionen kleiner als in der restlichen Flüssigkeit. Es existiert somit eine Nettoladung in dem Gebiet nahe der Wand, wobei diese Nettoladungen die Ladungen an der festen Oberfläche ausgleichen. Die elektrische Doppelschicht (EDL) ist die Schicht der Flüssigkeit, welche eine Nettoladung aufweist (Hunter 1981). Durch die Existenz der EDL werden verschiedene elektrokinetische Effekte ermöglicht, die ingenieurtechnisch in Mikrokanälen ausgenutzt werden können. Daher muss, im Hinblick auf die Simulation dieser elektrokinetischen Effekte, eine mathematische Beschreibung der EDL gefunden werden.

2.3 Modellierung der EDL

Es existieren viele Modelle, welche die EDL unterschiedlich gut beschreiben. Eine erste Vorstellung geht zurück auf von Helmholtz (Helmholtz 1879). Dabei werden die Wandladungen dadurch kompensiert, dass die Gegenionen fest an der Wand angelagert sind. Das Potential dieses Modells fällt vom Wandpotential φ_O linear auf den Wert Null ab und der Verlauf entspricht dem eines Kondensators. Die Ebene, die auf den Mittelpunkten der Gegenionen liegt, wird innere Helmholtzschicht genannt. Auf ihr erreicht das Potential den Wert Null. Dieses Modell beschreibt die Realität aber nur unzureichend, da Diffusion (Brownsche Molekularbewegung) durch die starre Anlagerung der Gegenionen nicht berücksichtigt wird. (Gouy 1910) und (Chapman 1913) ordnen in ihrem Modell die Gegenionen und Koionen in einer diffusen Schicht so an, dass sich ein Gleichgewicht zwischen elektrischer Anziehung und auseinandertreibender Diffusion einstellt. In Wandnähe halten sich deshalb mehr Gegenionen als Koionen auf, die ermittelte Konzentration ist aber zu hoch, weil die Ausdehnung der Ionen nicht berücksichtigt wird (Meisel 2004).

Stern kombiniert beide Modelle zum Gouy-Chapman-Stern Modell (Stern 1924). Direkt an der Wand sind zwar auch hier die Gegenionen fest angelagert (vgl. Abbildung: 2.1), die Oberflächenladungen werden aber nicht komplett kompensiert. Deshalb fällt das Potential zwischen der Oberfläche und der Sternschicht linear lediglich auf den Wert φ_{Stern} ab und nicht auf den Wert null wie beim Helmholtzmodell. Im Anschluss an die Sternschicht folgt eine Scherschicht, in der sich die Ionen eingeschränkt bewegen können. Danach folgt die sogenannte diffuse Schicht, in der sich die restlichen Gegenionen aufgrund ihrer Wärmebewegung diffus verteilen. Am Übergang von der Scherschicht zur diffusen Schicht herrscht das so genannte ζ -Potential (Zeta-Potential). Im weiteren Verlauf in der diffusen Schicht nimmt das Potential exponentiell ab. Die Konzentration der Gegenionen nimmt mit zunehmender Entfernung zur Wand auf die mittlere Konzentration in der Flüssigkeit ab. Gleichzeitig steigt die Konzentration der Koionen so an, dass die Flüssigkeit außerhalb der Grenzschicht elektrisch neutral ist. Die Dicke der diffusen Schicht wird durch die sogenannte Debye-Länge l_D charakterisiert.

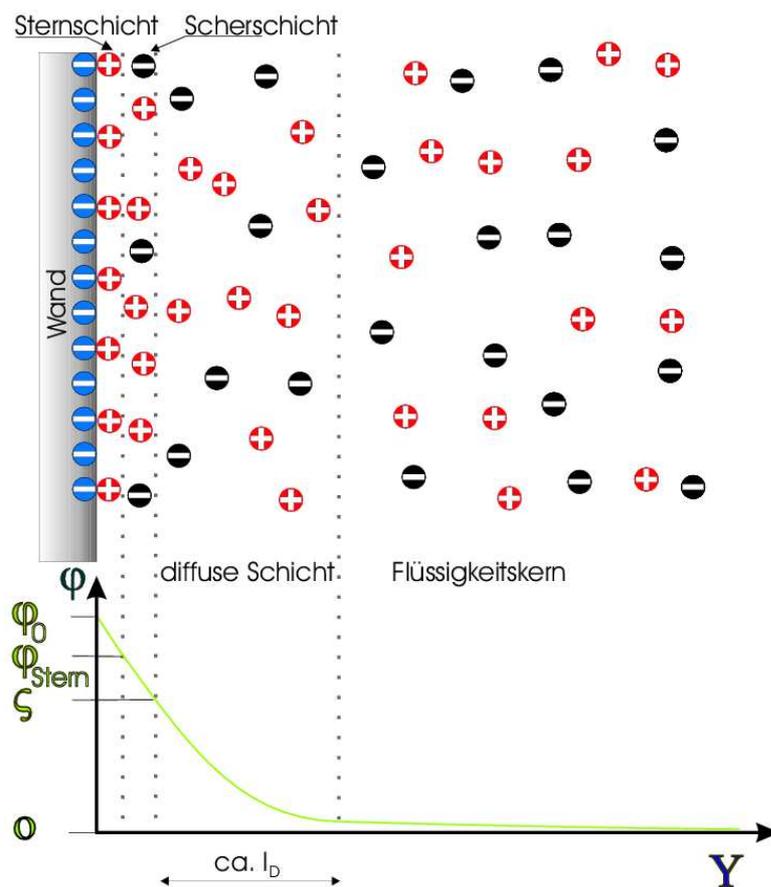


Abbildung 2.1: Sternmodell der EDL und Potentialverlauf.

Es existieren noch weitere Modelle, in denen z.B. der Bereich der Flüssigkeit, der direkt an der Festkörperoberfläche liegt, weiter verfeinert wird. So wird z.B. im Triple-Layer-Modell von Yates und Healy (Yates und Healy 1976) dem Sternmodell eine weitere Schicht zugefügt, in der sich spezifisch adsorbierte Ionen als eine Fläche teilweise hydratisierter Ionen möglichst stark an die feste Oberfläche annähern.

2.3.1 Mathematische Beschreibung der EDL

In Kapitel 2.1 ist die Potentialverteilung in einem Dielektrikum außerhalb der EDL beschrieben. Um das elektrische Potential φ innerhalb der EDL mathematisch zu beschreiben, kann mit der Annahme einer örtlich konstanten relativen Permittivität die Poisson-Gleichung (2.3) verwendet werden. Im Gegensatz zur Kernströmung (der Strömung außerhalb der EDL), ist im Bereich der elektrischen Doppelschicht die Nettoladungsdichte $q \neq 0$, da die Gegenionen im Überschuss vorhanden sind. Die folgende Beschreibung der mathematischen Zusammenhänge basiert auf den Ausführungen von (Newman und Thomas-Alyea 2004). Die Nettoladungsdichte q ergibt sich aus der Summe der Produkte aus lokaler Ionenkonzentration c_i mit der jeweiligen spezifischen Ladungszahl (Valenzzahl) z_i und der Faradayschen Konstante \mathcal{F} zu

$$q = \mathcal{F} \sum_i c_i z_i. \quad (2.6)$$

Die lokale Ionenkonzentration c_i kann unter bestimmten Bedingungen mit Hilfe der Boltzmann-Verteilung erfasst werden. Eine geladene Oberfläche und die umgebende Lösung befinden sich dazu im Gleichgewicht, wobei auf ein Ion der Sorte i nur die elektrostatische Kraft und eine Diffusionskraft durch die Brownsche Molekularbewegung wirken. Das elektrochemische Potential $\bar{\mu}_i$ eines Ions kann als das chemische Potential μ_i des Ions unter Einwirkung eines elektrischen Potentials φ gemäß

$$\bar{\mu}_i = \mu_i + \mathcal{F} z_i \varphi \quad (2.7)$$

beschrieben werden. Das chemische Potential μ_i kann durch die Nernst-Gleichung beschrieben werden:

$$\mu_i = \mu_i^\infty + R\vartheta \ln(a_i). \quad (2.8)$$

Hierbei beschreibt μ_i^∞ das chemische Potential unter Standardbedingungen, R die ideale Gaskonstante, ϑ die Temperatur und a_i die chemische Aktivität, welche ein Verhältnis der Konzentration zu einer Standardkonzentration darstellt:

$$a_i = \frac{c_i}{c_i^\infty}. \quad (2.9)$$

Unterstellt man dem System nun einen stationären (statischen) bzw. quasistationären Zustand, muss sich dieses im elektrochemischen Gleichgewicht befinden. Damit gilt für das elektrochemische Potential $\bar{\mu}_i = 0$ und es ergibt sich mit (2.7) und (2.8):

$$\mu_i^\infty + R\vartheta \ln(a_i) + \mathcal{F} z_i \varphi = 0. \quad (2.10)$$

Das chemische Potential μ_i^∞ kann ohne Beschränkung der Allgemeinheit zu null gesetzt werden und es ergibt sich für die Konzentration c_i der jeweiligen Ionensorte i der Zusammenhang:

$$c_i = c_i^\infty \exp\left(-\frac{\mathcal{F} z_i \varphi}{R\vartheta}\right). \quad (2.11)$$

Die Ionen folgen damit der Boltzmann-Verteilung. Die getroffenen Annahmen sind dabei (Li 2004):

- Das System bezieht sich auf das EDL-Feld einer homogenen Oberfläche, wie es durch das Potential φ beschrieben wird. Bei einer mikroskopisch heterogenen Oberfläche würde das Feld hingegen punktuell variieren.
- Die geladene Oberfläche ist in Kontakt mit einer unendlich großen Flüssigkeit. Dann gilt unendlich weit von der Wand entfernt $\varphi = 0$ und $c = c_i^\infty$.
- Für die Reynolds-Zahl muss gelten: $Re < 10$, da sonst die Ionenverteilung durch die Strömung gestört würde.

Obwohl die Annahmen in vielen Fällen nicht exakt erfüllt werden, stellt die Boltzmann-Verteilung die Grundlage für die Analyse elektrokinetischer Prozesse dar (Li 2004).

Die EDL wird im Folgenden mit dem Modell nach (Gouy 1910) und (Chapman 1913) modelliert. Nach der Elektrostatik wird der Zusammenhang zwischen elektrischem Potential φ und der lokalen Ladungsdichte q durch die Poisson-Gleichung (2.3) und die darin unbekanntes Ladungsdichte durch (2.6) beschrieben. Falls die Verteilung der Ionen durch eine Boltzmann-Verteilung angenähert werden kann, ist die Konzentration der Ionen c_i bestimmt durch Gleichung (2.11). Dann gilt für die elektrische Nettoladungsdichte:

$$q = \mathcal{F} \sum_i z_i c_i^\infty \exp\left(-\frac{z_i \varphi \mathcal{F}}{R\vartheta}\right). \quad (2.12)$$

Das Einsetzen von (2.12) in die Poisson-Gleichung (2.3) führt zur sogenannten Poisson-Boltzmann-Gleichung:

$$\Delta\varphi = -\frac{\mathcal{F}}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \sum_i z_i c_i^\infty \exp\left(-\frac{z_i \varphi \mathcal{F}}{R\vartheta}\right). \quad (2.13)$$

Aus der Lösung dieser Gleichung kann nun die elektrische Potentialverteilung φ der EDL berechnet werden. Für eine unendlich ausgedehnte Oberfläche, kann Gleichung (2.13) auf die eindimensionale Form

$$\varphi_{yy} = -\frac{\mathcal{F}}{\varepsilon_0\varepsilon_r} \sum_i z_i c_i^\infty \exp\left(-\frac{z_i\varphi\mathcal{F}}{R\vartheta}\right) \quad (2.14)$$

gebracht werden. Die tiefgestellten Indize y bedeuten hierbei eine Ableitung nach y . Diese Differentialgleichung ist für monovalente symmetrische Elektrolyte und einfache Geometrien analytisch lösbar. Für eine unendlich ausgedehnte Wand lautet die Lösung der Poisson-Boltzmann-Gleichung (Hunter 1981):

$$|\varphi| = \frac{2\vartheta R}{z\mathcal{F}} \ln\left(\frac{1 + \exp(-\kappa x) \tanh\left(\frac{1}{4}\frac{z\varphi_0\mathcal{F}}{\vartheta R}\right)}{1 - \exp(-\kappa x) \tanh\left(\frac{1}{4}\frac{z\varphi_0\mathcal{F}}{\vartheta R}\right)}\right). \quad (2.15)$$

Der sogenannte Debye-Hückel-Parameter κ fasst mehrere Konstanten folgendermaßen zusammenfassen

$$\kappa^2 = \sum_i \frac{z_i^2 c_i^\infty \mathcal{F}^2}{\varepsilon_0\varepsilon_r \vartheta R}. \quad (2.16)$$

Die Dimension von κ^{-1} ist eine Länge und wird auch als Debye-Länge l_D mit $l_D = \kappa^{-1}$ bezeichnet. Sie charakterisiert die ungefähre Dicke der EDL. Die diffuse Schicht erstreckt sich über etwa 3-5 l_D (Li 2004). Bei reinem Wasser beträgt die Grenzschichtdicke aufgrund der Autoprotolyse des Wassers ca. $l_D \approx 1\mu m$ (Barz und Ehrhard 2005).

Für eine weitergehende Anwendbarkeit wird die DGL linearisiert, damit auch für beliebige Elektrolyte eine analytische Näherungslösung vorliegt. Diese Vereinfachung ist unter dem Namen Debye-Hückel-Linearisierung in der Literatur bekannt (Debye und Hückel 1923). In diesem Fall wird die Exponentialfunktion durch ein Taylorpolynom approximiert und die Reihe nach dem zweiten Glied abgebrochen. Dafür muss der Exponent deutlich kleiner als eins sein, also muss $z_i\varphi\mathcal{F} \ll \vartheta R$ gelten. Physikalisch bedeutet dies, dass die Diffusionskräfte im Vergleich zu den elektrostatischen Kräften dominieren. Für die Debye-Hückel-Linearisierung muss demnach bei einem monovalenten symmetrischen Elektrolyt bei $\vartheta = 293K$ gelten:

$$\varphi \ll \frac{\vartheta R}{z_i\mathcal{F}} \simeq 26mV. \quad (2.17)$$

Damit folgt für die linearisierte Poisson-Boltzmann-Gleichung (2.14):

$$\varphi_{yy} = -\sum_i \frac{z_i c_i^\infty \mathcal{F}}{\varepsilon_0\varepsilon_r} + \sum_i \frac{z_i^2 c_i^\infty \mathcal{F}^2}{\varepsilon_0\varepsilon_r \vartheta R} \varphi. \quad (2.18)$$

Der erste Summand auf der rechten Seite verschwindet ($\sum_i \frac{z_i c_i^\infty \mathcal{F}}{\varepsilon_0\varepsilon_r} = 0$), da in der Kernströmung Elektroneutralität herrscht. Mit (2.16) lässt sich (2.18) vereinfachen zu:

$$\varphi_{yy} = \kappa^2 \varphi. \quad (2.19)$$

Mit den so gewonnenen Erkenntnissen können die Potential- und Ladungsverteilung berechnet werden, welche für die Modellierung der numerischen Behandlung der Elektrosmose benötigt werden. Um die Verteilung der Ladungsdichte und den Potentialverlauf in der EDL formulieren zu können, werden für die eindimensionale Poisson-Boltzmann-Gleichung mit der Debye-Hückel-Approximation noch entsprechende Randbedingungen benötigt. In der Poisson-Boltzmann Gleichung (2.14) setzen (Janssens-Maenhout und Schulenberg 2003) für die Randbedingungen das Potential in unendlicher Entfernung zur Wand auf den Wert null:

$$\varphi(y \rightarrow \infty) = 0. \quad (2.20)$$

An der Wand ($y = 0$) gilt nach (Barz 2005) für das selbstinduzierte elektrische Feld:

$$\vec{E}_{ind,y}(y = 0) = - \left. \frac{d\varphi}{dy} \right|_{y=0} = - \frac{q\zeta}{\varepsilon_0\varepsilon_r}. \quad (2.21)$$

Der Potentialverlauf der diffusen Schicht ergibt sich somit zu

$$\varphi(y) = - \frac{q\zeta l_D}{\varepsilon_0\varepsilon_r} \exp\left(-\frac{y}{l_D}\right), \quad (2.22)$$

womit die Ladungsdichtverteilung eindeutig bestimmt ist durch:

$$q(y) = \frac{q\zeta}{l_D} \exp\left(-\frac{y}{l_D}\right). \quad (2.23)$$

Daraus lässt sich mit (2.22) und $\varphi(y)|_{y=0} = \zeta$ die scheinbare Wandladungsdichte q_ζ bestimmen zu:

$$q_\zeta = - \frac{\zeta\varepsilon_0\varepsilon_r}{l_D}. \quad (2.24)$$

Um den Einfluss der Debye-Hückel-Approximation für höhere ζ -Potentiale auf die Potentialverteilung zu erhalten, wird die Lösung der linearisierten Gleichung mit der analytischen Lösung für den Fall einer unendlich ausgedehnten Wand verglichen (2.15). Bei einem ζ -Potential von $|\zeta| = 25mV$ liefert die Linearisierung eine gute Übereinstimmung mit einer Abweichung von $\Delta\zeta_{25mV} < 2\%$, bei höheren ζ -Potentialen (z.B. $|\zeta| = 200mV$) liefert die Approximation einen bis zum Faktor 2 zu hohen Wert, vgl. Abbildung: 2.2.

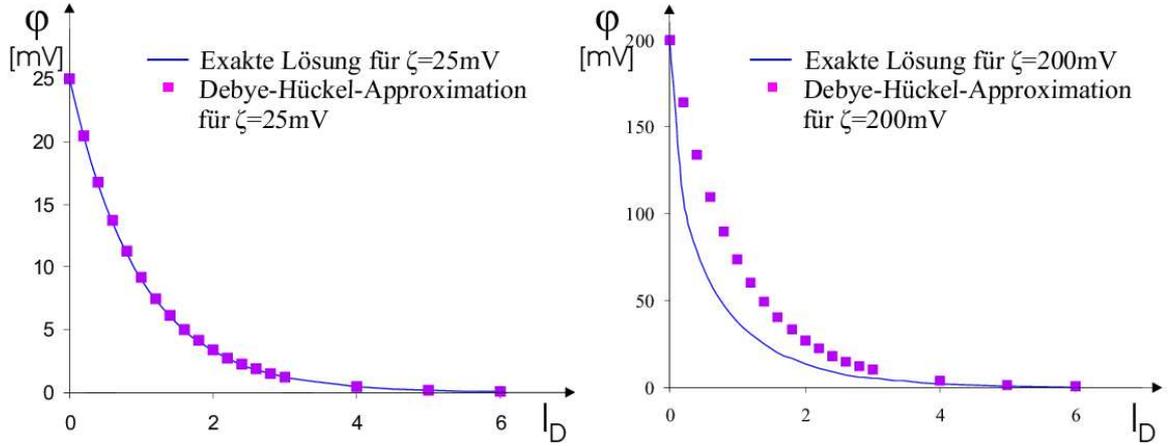


Abbildung 2.2: Vergleich zwischen dem Potentialverlauf nach Poisson-Boltzmann und der Debye-Hückel-Approximation bei $\zeta = 25\text{mV}$ und $\zeta = 200\text{mV}$.

Der Einfluss eines externen elektrischen Feldes auf die Ladungsverteilung innerhalb der EDL kann vernachlässigt werden, wenn die Feldstärke des externen elektrischen Feldes viel kleiner ist als die selbstinduzierte Feldstärke innerhalb der EDL (Li 2004). Bei einem typischen ζ -Potential von $\zeta = -11\text{mV}$ ergibt sich in der EDL eine Feldstärke von $\vec{E}_{ind,\vec{y}} \approx 11\text{kVm}^{-1}$. Wird eine Potentialdifferenz von 1kV über einem Kanal der Länge $L = 70\text{mm}$ angelegt, ergibt sich ein äußeres elektrisches Feld von $\vec{E} \approx 14,3\text{kVm}^{-1}$. In diesem Parameterbereich (der auch in den Mikromischern dieser Arbeit vorliegt) ist diese Abschätzung sicher grenzwertig. In sämtlichen untersuchten Geometrien stehen die elektrischen Felder allerdings fast ausschließlich senkrecht aufeinander, wodurch ein Einfluss der externen elektrischen Felder auf die Ladungsverteilung in der EDL vernachlässigt werden kann. Für die Verteilung der Ionen wird ein Gleichgewichtszustand angenommen. Eine Störung wird demnach durch diffusive Vorgänge in der Zeit t_{EDL} ausgeglichen und die Wiederanordnung von Ladungen in der EDL beträgt mit der Diffusionskonstante D :

$$t_{EDL} = \frac{l_D^2}{D}. \quad (2.25)$$

Für die typischen Werte von $l_D = 1\mu\text{m}$ und $D = 3 \cdot 10^{-9}\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ergibt sich für die charakteristische Zeit innerhalb der EDL $t_{EDL} \approx 0,3 \cdot 10^{-3}\text{s}$.

2.4 Elektrokinetische Effekte in der Mikrofluidik

Mit dem Begriff Elektrokinetik werden diejenigen physikalischen Effekte bezeichnet, deren Ursache auf die Existenz einer elektrischen Doppelschicht zurückzuführen sind. Nach (Shaw 1980) können vier verschiedene elektrokinetische Phänomene unterschieden werden. Jedoch ist nur einer dieser Effekte, die Elektroosmose, für diese Arbeit relevant. Daher werden die anderen Effekte nur kurz vorgestellt. Im Wesentlichen wird in diesem Kapitel das Wesen der Elektroosmose erklärt und die erforderlichen Zusammenhänge zu ihrer mathematischen Beschreibung vorgestellt.

1. Elektrophorese

Die Elektrophorese ist die Bewegung eines geladenen Teilchens relativ zu einer umgebenden Flüssigkeit, die durch ein äußeres elektrisches Feld verursacht wird. Durch das äußere elektrische Feld wirkt eine Coulombkraft auf die geladenen Teilchen. Die resultierende Geschwindigkeit ist in der Regel proportional zum Betrag der elektrischen Feldstärke. Die Proportionalitätskonstante wird elektrophoretische Mobilität genannt. Sie ist eine spezielle Kenngröße, das heißt verschiedene Teilchenarten haben verschiedene Mobilitäten. Daher eignet sich die Elektrophorese als analytisches Verfahren in der Chemie oder in der Biochemie.

2. Strömungspotential

Wenn sich in einer strömenden Flüssigkeit eine EDL an der Grenzfläche ausgebildet hat, entspricht der Transport der „überschüssigen“ Ladungsträger einem elektrischen Strom. Dieser sogenannte „streaming current“ verursacht ein elektrisches Strömungspotential (streaming potential). Durch die Potentialdifferenz zwischen zwei Orten entlang der Strömungsrichtung, wirkt auf die Gegenionen in der diffusen Schicht eine elektrische Kraft entgegen der Strömungsrichtung. Dadurch wird ein weiterer elektrischer Strom verursacht, der sogenannte „conducting current“. Im stationären Zustand wird der streaming current durch den conduction current ausgeglichen und es liegt kein Nettostrom vor.

3. Sedimentationspotential

Das Potential bildet sich bei einer Bewegung von Partikeln mit einer geladenen Oberfläche relativ zum Fluid aus. Dies kann z.B. ein schwerkraftbedingtes Absetzen (Sedimentation) von den Partikeln in einer Flüssigkeit sein, jedoch auch jede andere Bewegung aufgrund einer Volumenkraft.

4. Elektroosmose

Die Elektroosmose bezeichnet die Bewegung der Ladungen in der EDL relativ zur geladenen Oberfläche. Befinden sich Ladungen in einem elektrischen Feld, wirkt auf sie eine elektrostatische Kraft (Coulombkraft). Diese führt bei Kationen zu einer Bewegung in Richtung der Feldlinien und bei Anionen zu einer in die entgegengesetzte Richtung. Da die Ionen in hydratisierter Form vorliegen, ziehen sie andere Moleküle aufgrund viskoser Kräfte mit. Außerhalb der EDL liegen die positiv und negativ geladenen Ladungsträger in gleicher Konzentration vor, so dass sich hier die Flüsse der Ionensorten im Mittel aufheben. In der EDL herrscht hingegen ein Überschuss an einer Ionensorte (den Gegenionen), so dass hier eine Nettobewegung resultiert. Ist der Kanal hinreichend klein (im Bereich einiger hundert Mikrometer), stellt sich so eine Bewegung des Fluids über der gesamten Kanalweite ein, vgl. Abbildung 2.3. Im Gegensatz zu einer eingelaufenen druckgetriebenen Strömung ist das elektroosmotische Geschwindigkeitsprofil eher pfpfenförmig. Die Flüssigkeit wird in der dünnen EDL von der Geschwindigkeit null (Haftbedingung an der Wand) auf einen Maximalwert beschleunigt. Im weiteren Verlauf zur Mitte des Kanals hin, fällt die Geschwindigkeit geringfügig ab, da die Strömungsverluste im Kanal überwunden werden müssen.

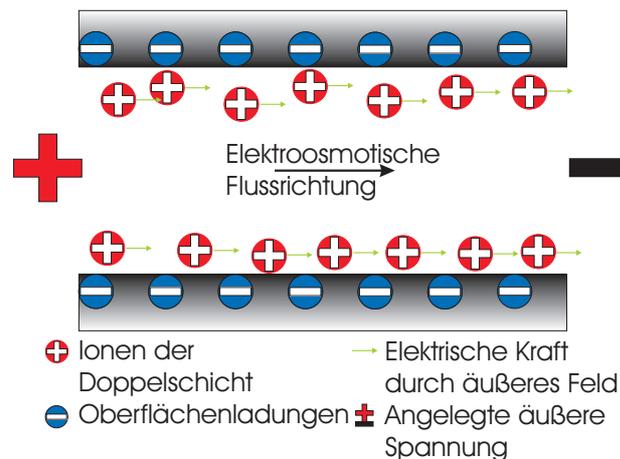


Abbildung 2.3: Schema der Elektroosmose.

Schließen sich an einen geraden Kanal Gebiete mit einer Änderung des Strömungsquerschnittes an, kann aber eine wesentliche Geschwindigkeitsabnahme in der Mitte des Kanals festgestellt werden. (Zhang, Gu, Barber und Emerson 2004) machen als Grund für diesen Geschwindigkeitsverlust einen Druckgradienten ausfindig. Dieser existiert selbst dann, wenn an beiden Reservoiren Atmosphärendruck anliegt und er wirkt entgegen der elektroosmotischen Strömungsrichtung. Die physikalische Ursache ist die viskose Dissipation der Flüssigkeit am Kanalein- und Ausgang (Kontraktion und Expansion), da diese einen ir-

reversiblen Druckverlust bedingt. Der sich einstellende Druckgradient wird somit durch die Flüssigkeit selbst induziert. Im Kanal wird dabei genau der Druck aufgebaut, der nötig ist um die Flüssigkeit in und aus den Kanal zu treiben. Dieser selbstinduzierte Druckgradient muss vorhanden sein, weil über dem Kanalein- und Ausgang das elektrische Potential nahezu konstant ist und die Flüssigkeit damit nur durch einen Druckgradienten bewegt werden kann (Zhang et al. 2004). Mit diesem Modell können z.B. auch bei komplexeren Geometrien die Verlustströmungen (leakage flow) in einen feldfreien Nebenkanal erklärt werden (Zhang et al. 2004). Für einen zweidimensionalen Kanal kann der Druckverlust δp , der sich durch Kontraktion und Expansion einstellt, für eine schleichende Strömung theoretisch bestimmt werden durch:

$$\delta p = \frac{32 \mu \bar{v}}{\pi d_0}. \quad (2.26)$$

Dabei ist μ die dynamische Viskosität, \bar{v} die mittlere Geschwindigkeit und d_0 die Kanalweite (Roscoe 1949). Die Gleichung (2.26) gilt nur für $Re < 1,6$, da bei höheren Reynolds-Zahlen die Trägheitseffekte nicht länger vernachlässigt werden können und der Druckverlust nicht länger proportional zur mittleren Geschwindigkeit \bar{v} ist. Neben der Kontraktion und Expansion des Fluids beim Ein- und Auslaufen aus dem Kanal existieren auch andere mögliche Ursachen für einen Druckunterschied. So findet zwischen der Haftbedingung an der Kanalwand und dem Geschwindigkeitsmaximum in der EDL Reibung statt. Dieser Energieverlust wird aber in erster Näherung durch die Energiezufuhr aus dem elektrischen Feld ausgeglichen (Zhang et al. 2004) und wird somit im Folgenden vernachlässigt. Es werden auch die Energieverluste durch Reibung in der Einlaufstrecke vernachlässigt, da diese bei einer schleichenden Strömung etwa $l_{Einlauf} = 0,63d_0$ beträgt. Bei kleinem Kanaldurchmesser und niedriger Strömungsgeschwindigkeit, sind diese Druckverluste viel kleiner als die durch Kontraktion und Expansion (Zhang et al. 2004). Für einen geraden Kanal der Länge l kann der induzierte Druckverlust damit generell vernachlässigt werden, wenn gilt

$$\frac{4d_0}{\pi l} \ll 1. \quad (2.27)$$

Die Größe des Einflusses ist somit direkt abhängig vom Längenverhältnis der Kanallänge l zur Kanalweite d_0 , also von $\frac{l}{d_0}$. Ein quasi ideales propfenförmiges Profil (mit einer kaum merklichen Geschwindigkeitsabnahme zur Kanalmitte hin) findet sich ab einem Längenverhältnis von $\frac{l}{d_0} \approx 100$ (Zhang et al. 2004).

2.5 Grundgleichungen

In der Kontinuumsmechanik können Strömungen mathematisch über die Erhaltungsgleichungen des Impulses, der Masse und der Energie beschrieben werden. Die in den durchgeführten Simulationen vorliegende Flüssigkeit wird als ein inkompressibles newtonsches Fluid betrachtet, dessen Temperatur ϑ und Zähigkeit μ als konstant angenommen werden. Das Strömungssystem wird weiterhin zweidimensional in der (x,y)-Ebene und instationär betrachtet.

Auf das Fluid wird ein äußeres elektrisches Feld $\vec{E} = (E_x, E_y)^T$ angelegt. Eine Erwärmung des Fluids (Joule Heating) kann durch das große Verhältnis von Oberfläche zu Volumen vernachlässigt werden. Auch die viskose Dissipation wird vernachlässigt, wodurch das System isotherm betrachtet werden kann und damit das Lösen der Energieerhaltungsgleichung entfällt. Zur Aufstellung des Gleichungssystems werden die folgenden Annahmen getroffen. Zunächst wird die Gravitationskraft vernachlässigt. Da nur verdünnte Lösungen behandelt werden, sind auch die Ströme sehr klein und die Lorentzkräfte können vernachlässigt werden. Die elektrische Ladungsverteilung q wird in der EDL durch Gleichung (2.23) beschrieben. Die elektrischen Felder bewirken eine zusätzliche Volumenkraft, um welche die Navier-Stokes-Gleichungen erweitert werden (Hunter 1981). Damit ergibt sich zur Beschreibung der Elektroosmose folgendes System von Differentialgleichungen:

$$\Delta\varphi = q, \tag{2.28}$$

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0, \tag{2.29}$$

$$\rho \left(\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} \right) = -\nabla p + \mu \Delta \vec{v} - q \nabla \varphi. \tag{2.30}$$

Darin wird der Geschwindigkeitsvektor mit \vec{v} bezeichnet, der Druckgradient mit ∇p , die dynamische Viskosität mit μ , das elektrische Potential mit φ , die Dichte mit ρ und die Zeit mit t . Das System beschreibt für die Elektroosmose die unabdingbare Kenntnis der Potentialverteilung einer äußeren elektrischen Spannung (2.28), die Kontinuität (2.29) und die Impulserhaltung (2.30).

2.6 Stofftransport

In einer Flüssigkeit wird der Stofftransport durch Konvektion und Diffusion durch die Gleichung

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot (\vec{v}c) = D \cdot \Delta c \quad (2.31)$$

beschrieben. Darin ist c eine Konzentration und D die Diffusionskonstante. Um eine Aussage über die Mischgüte Γ in einer numerischen Simulation treffen zu können, ist ein Gütekriterium nötig. (Glasgow, Lieber und Aubry 2004) gehen von der statistischen Standardabweichung aus und leiten für eine Vermischung zweier Stoffe mit gleichem Volumenfluss folgende Definition ab:

$$\Gamma = 1 - \frac{\sqrt{\sum_{n=1}^m \frac{(c_n - c_{opt})^2}{m} \left(\frac{J_n}{\bar{J}}\right)}}{c_{opt}}. \quad (2.32)$$

Hier beschreibt m die Anzahl der Zellen über dem Querschnitt und c_{opt} die Konzentration bei vollständiger Durchmischung. Sind in einem System zwei Reagenzien vorhanden und liegen beide in gleicher Menge vor, gilt für die entdimensionierte Konzentration bei vollständiger Vermischung $C_{opt} = 0,5$, sofern die Konzentration mit der Anfangskonzentration skaliert wird. Die Variable c_n beschreibt die Konzentration in der n -ten Zelle, J_n die Flussrate der n -ten Zelle und \bar{J} den mittleren Volumenfluss durch alle Zellen. Dieses Gütekriterium liefert bei vollständiger Vermischung den Wert $\Gamma = 1$ und den Wert $\Gamma = 0$, falls keine Vermischung vorliegt.

Kapitel 3

Numerik

In diesem Kapitel wird ein kurzer Überblick über das numerische Verfahren, die Diskretisierung des verwendeten Verfahrens, die Netzerstellung und über die, der Modellierung zu Grunde liegenden, Asymptotik gegeben.

3.1 Numerisches Verfahren

In der Regel werden für alle relevanten Probleme der Strömungsmechanik keine exakten Lösungen der Erhaltungsgleichungen gefunden. Da dies nur für wenige Spezialfälle gelingt, werden für die restlichen Fälle numerische Verfahren für eine Näherungslösung der Erhaltungsgleichungen verwendet. Es existieren mehrere numerische Verfahren, die sich bezüglich ihrer Anpassungsfähigkeit und Lösungsgenauigkeit unterscheiden. Die in komplexen Geometrien verwendbaren Methoden reichen von der Finite-Differenzen- (FDM) über die Finite-Volumen- (FVM) bis zur Finiten-Elemente-Methode (FEM) (Oertel 1995). In dieser Arbeit wird das kommerzielle FEM-Programm *Fidap* 8.7.2 verwendet. Bei dieser Methode wird das Simulationsgebiet in eine endliche Anzahl kleinerer Gebiete mit möglichst einfacher Geometrie aufgeteilt. Diese Teilgebiete sind die finiten Elemente. In diesen Teilgebieten werden Ansatzfunktionen für die Erhaltungsgleichungen definiert. Anschließend werden die Ansätze in das Differentialgleichungssystem eingesetzt, welches in einer Variationsformulierung vorliegt. Unter Berücksichtigung der Anfangs- und Randbedingungen werden die Koeffizienten der Ansatzfunktion aus einer Fehlerminimierung bestimmt. Rundungs-, Abbruch- und Diskretisierungsfehler beruhen dabei auf einer endlichen Anzahl an Diskretisierungen, Abweichungen zu einer analytischen Lösung sind somit bei keinem numerischen Verfahren zu verhindern. Um feststellen zu können, ob die verwendeten Einstellungen ein optimales Ergebnis erzielen, müssen die Ergebnisse der Simulation geeignet verifiziert werden. Die

Verifikation zur Elektroosmose wurde von (Meisel 2004) durchgeführt, die Verifikation des Stofftransportes von (Barz 2005).

Bei der Simulation werden vierseitige Elemente mit Ansatzfunktionen zweiter Ordnung für die Geschwindigkeiten, das elektrische Potential und für den Stofftransport verwendet. Der Druck wird mit einer linearen Ansatzfunktion beschrieben. Damit der Druckverlauf zwischen zwei Elementen stetig ist, liegen die Freiheitsgrade des Druckes auf den vier Eckknoten eines Elementes und nicht auf den Knoten innerhalb eines Elementes. Als Zeitschrittverfahren wird ein implizites Trapez-Verfahren zweiter Ordnung verwendet. Der Prädiktorschritt wird aus der Adams-Bashforth-Formulierung erhalten, der Korrektorschritt nutzt eine Trapezregel. Da bei zweidimensionalen Problemen das resultierende nichtlineare Gleichungssystem gekoppelt effizienter gelöst wird als ein entkoppeltes Gleichungssystem, wird das resultierende System vollständig gekoppelt gelöst (?).

3.2 Entdimensionierung und asymptotische Anpassung

Eine Entdimensionierung der Variablen im Gleichungssystem mit einem typischen Wert soll alle Variablen in die Größenordnung 1 bringen. Durch die so entstehenden dimensionslosen Kennzahlen wird sofort ersichtlich, welche Terme maßgeblich sind. Die Entdimensionierung bewirkt auch eine schnellere numerische Konvergenz und eine Abschwächung der Rundungsfehler. Die Variablen werden durch folgende typische Skalen entdimensioniert:

$$(X, Y) = \frac{(x, y)}{d_0}, (U, V) = \frac{(u, v)}{u_0}, P = \frac{pd_0}{\mu u_0}, T = \frac{u_0 t}{d_0}, \Phi = \frac{\varphi}{\varphi_0}, C = \frac{c}{c_0}. \quad (3.1)$$

Die Ortskoordinaten (x, y) und sämtliche Abmaße (bspw. Kanallänge l) werden mit der Kanalweite d_0 entdimensioniert und die Geschwindigkeit (u, v) mit einer typischen Geschwindigkeit u_0 . Für den Druck p wird die viskose Druckskala verwendet, da bei den erwarteten kleinen Reynolds-Zahlen Trägheitseffekte nur eine untergeordnete Rolle spielen. Die Zeit t wird mit einer charakteristischen Zeitskala entdimensioniert, welche durch das Verhältnis von charakteristischer Länge zu charakteristischer Geschwindigkeit gebildet wird. Für einen Mikrokanal mit einer Breite im Bereich von $d_0 \approx 100\mu m$ für die typische Längenskala und einer typischen elektroosmotischen Geschwindigkeitsskala von $u_0 \approx 1mm s^{-1}$ ergibt sich eine typische Zeitskala von $t_0 \approx 0,1s$. Die Potentialverteilung wird mit der angelegten Spannungsdifferenz φ_0 entdimensioniert und die Konzentration c mit der Anfangskonzentration.

Dabei entstehen mehrere physikalische Kennzahlen, in welche die jeweiligen Parameter des simulierten Systems eingehen und einen Einfluss auf die Durchmischung der Reagenzien haben. Die Reynolds-Zahl Re (da sehr klein und damit stets eine laminare Strömung vorliegt)

und die Form der Anregungsfunktion haben dabei nur einen unbedeutenden Einfluss auf die Vermischung (Glasgow et al. 2004). Die Reynolds-Zahl Re beschreibt das Verhältnis von Trägheitskräften zu viskosen Kräften:

$$Re = \frac{\rho u_0 d_0}{\mu}. \quad (3.2)$$

Sie wird mit der Zähigkeit μ , der Dichte ρ und charakteristischen Werten für eine Geschwindigkeit u_0 und der Kanalweite d_0 gebildet. Es ist bekannt, dass bei einem T-förmigen Mischer eine steigende Strouhal-Zahl die Vermischung begünstigt (Glasgow et al. 2004). Um dieses Verhalten sowohl auf andere Geometrien als auch auf andere Verhältnisse zwischen Hauptströmung und Sekundärströmung übertragen zu können, wird im Folgenden eine Strouhal-Zahl aus dem Verhältnis von lokaler zu konvektiver Beschleunigungsänderung definiert (Zierep 1991):

$$Str = \frac{u_{0,lokal} f_0}{u_{0,konvektiv}^2 / d_0} = \frac{u_{0,lokal} f_0 d_0}{u_{0,konvektiv}^2}. \quad (3.3)$$

Dabei ist es zweckmäßig, bei den charakteristischen Geschwindigkeiten u_0 zwischen einer charakteristischen konvektiven (konstanten) Geschwindigkeit $u_{0,konvektiv}$, und einer lokal zeitabhängigen (oszillierenden) Geschwindigkeit $u_{0,lokal}$ zu unterscheiden. Mit f_0 wird die charakteristische Frequenz beschrieben, mit der das elektrische Potential oszilliert. Die für den Stofftransport maßgebliche Kenngröße ist die Peclet-Zahl, welche sich durch das Verhältnis von impulsbehaftetem Stofftransport zu diffusivem Stofftransport beschreiben lässt:

$$Pe = \frac{u_0 d_0}{D}. \quad (3.4)$$

Diese Kennzahl kann nicht frei verändert werden, da sie das Produkt aus der Reynolds-Zahl und der Schmidt-Zahl ist:

$$Sc = \frac{D}{\nu}. \quad (3.5)$$

Die Schmidt-Zahl beschreibt das Verhältnis der Koeffizienten von Stofftransport D zum Impulstransport ν und stellt somit eine Stoffeigenschaft dar. In dieser Arbeit werden sowohl Viskosität ν als auch Diffusionskonstante D als konstant angenommen.

Um das Differentialgleichungssystem ((2.28)-(2.31)) direkt numerisch behandeln zu können, müsste die EDL durch ein feines Netz in Kanalwandnähe und eine geeignete Modellierung dargestellt werden. Da die Abmessungen des Kanals aber um Größenordnungen über der EDL-Dicke liegen, ist der numerische Aufwand dafür sehr groß. Das Problem zweier unterschiedlicher Längenskalen (Dicke der EDL und Breite des Kanals) kann durch eine

Unterteilung der Strömung in eine wandnahe Strömung (im Bereich der EDL) und eine Kanalströmung (ohne EDL) mit anschließender Anpassung der Randbedingungen umgangen werden (Barz 2005). Das Simulationsgebiet bildet dann lediglich die Kernströmung. Der Einfluss der EDL wird über modifizierte Randbedingungen erfasst, welche Übergangsbedingungen zwischen den beiden Strömungsbereichen darstellen. Die Erhaltungsgleichungen liegen damit in einer Form vor, in der sie mit jeder kommerziellen CFD-Software gelöst werden können, ohne dass weitere Modifikationen nötig wären. Die entdimensionierte Form des DGL-Systems ((2.28)-(2.31)) lautet dann:

$$\Delta\Phi = 0, \quad (3.6)$$

$$\nabla \cdot \vec{V} = 0, \quad (3.7)$$

$$Re(\vec{V}_T + (\vec{V} \cdot \nabla)\vec{V}) = -\nabla P + \Delta\vec{V}, \quad (3.8)$$

$$C_T + \nabla \cdot (\vec{V}C) = \frac{1}{Pe}\Delta C. \quad (3.9)$$

Dabei beschreibt der Index T die partielle Ableitung nach der Zeit. Die asymptotische Anpassung der Kernlösung an die Wandlösung liefert folgende Übergangsbedingung für die Komponenten des Geschwindigkeitsvektors \vec{V} , welche mit dem Index W gekennzeichnet sind. Sie können physikalisch als eine scheinbare Wandgeschwindigkeit aufgefasst werden. Dabei ist es zweckmäßig, auf ein wandtangenciales und wandnormales Koordinatensystem überzugehen, welches durch eine Tilde gekennzeichnet wird:

$$\tilde{U}_W = \frac{q\zeta l_D}{u_0\mu} E_{\vec{x}} = -\frac{q\zeta l_D}{u_0\mu} \nabla\Phi_{\vec{x}}, \quad (3.10)$$

$$\tilde{V}_W = 0. \quad (3.11)$$

Kapitel 4

Numerische Simulation eines geraden Kanals und ein Vergleich mit einem Experiment

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Simulation einer elektroosmotischen Strömung in einem geraden Kanal gezeigt. Dazu muss das in dieser Arbeit verwendete FEM-Programm *Fidap* 8.7.2 modifiziert werden. Der Einfluss der elektrischen Doppelschicht auf die Strömung wird über die in Kapitel 3.2 eingeführten Übergangsbedingungen wiedergegeben. Für eine eingelaufene Flüssigkeitsströmung und ein konstantes elektrisches Feld existiert eine asymptotische Näherungslösung, welche den Einfluss der elektrischen Grenzschicht berücksichtigt (Ehrhard 2004). Die Experimente, die zum Vergleich dienen, sind (Matsumoto et al. 2005) entnommen. In dieser Arbeit werden unter anderem Messungen zum elektroosmotischem Strömungsprofil in einem geraden Kanal durchgeführt. Die Messungen werden mit einem sogenannten Mikro-PIV (particle-image-velicometry) in der mittleren Ebene des Kanals durchgeführt. Als Tracerpartikel werden dazu *of Nile-red fluorescent microspheres* von *Molecular Probes Inc.* verwendet, die einen Durchmesser von $1\mu m$ besitzen. Abbildung 4.1 zeigt schematisch die Versuchsanordnung. Sie besteht aus einem PDMS-Chip, welcher auf einer Glasplatte befestigt ist. In dem Chip ist ein rechteckiger Kanal mit einer Breite von $d_0 = 100\mu m$, einer Höhe von $h = 50\mu m$ und einer ungefähren Länge von $l = 45mm$ eingeprägt. An den Kanal schließen sich zwei Reservoirs mit einem Innendurchmesser von ca. $10mm$ an. In der Mitte der Reservoirs sind Platinelektroden eingebracht, welche mit einer elektrischen Spannungsquelle verbunden sind. Die angelegte Potentialdifferenz beträgt dabei $\Delta\varphi = 100V$. Wird reines entionisiertes Wasser als Flüssigkeit verwendet, kann das ζ -Potential aus den Messungen mithilfe der Näherungslösung (4.11) von (Ehrhard 2004) zu einem Wert von $\zeta \approx -31mV$ bestimmt werden.

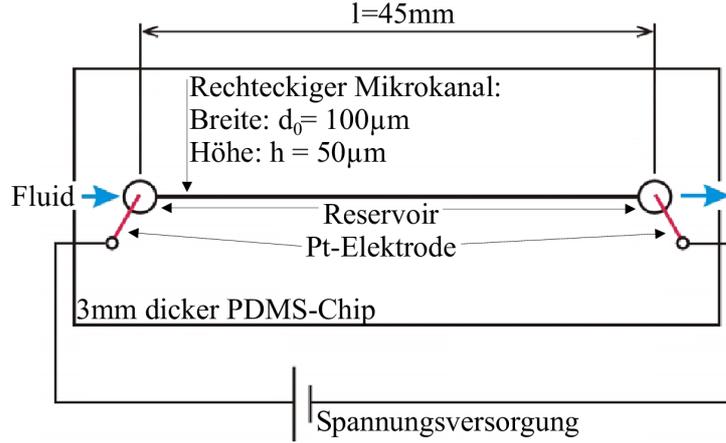


Abbildung 4.1: Schematischer Versuchsaufbau des geraden Mikrokanals.

4.1 Numerische Simulation

Ein Problem stellt die Tatsache dar, dass eine Laplace-Gleichung zur Behandlung des elektrischen Potentials in dieser Form nicht in *Fidap* 8.7.2 vorhanden ist. Jedoch kann dazu eine modifizierte Konvektions-Diffusionsgleichung verwendet werden. Dabei erlaubt es das Programm, die Konvektion auszuschalten. Die Größenordnung des zeitabhängigen Terms kann über einen beliebig wählbaren Faktor \aleph beeinflusst werden. Dabei hat sich ein Wert von $\aleph = 10^{-11}$ als angemessen erwiesen.

Eine weitere Problematik, die bei allen numerischen Simulationen auftritt, ist die Limitierung der Rechnerkapazität. Aus diesem Grund können technische Systeme in einer Simulation oft nicht vollständig erfasst werden, weshalb das Simulationsgebiet dann verkleinert wird. Auch in dieser Arbeit kann eine dreidimensionale Simulation von der vollständigen Kanalstruktur nicht durchgeführt werden. Deshalb wird nur ein Ausschnitt der gesamten Struktur ausgewählt, wofür die Randbedingungen dann entsprechend angepasst werden müssen. Ein weiteres Problem ergibt sich dadurch, dass in *Fidap* 8.7.2 keine Druckrandbedingungen vorgegeben werden können. Eine Lösungsmöglichkeit besteht darin, eine der Bewegungsrichtung entgegengesetzte Volumenkraft \vec{k} einzufügen, welche den selben Druckverlust verursacht, welcher über der nicht simulierten Kanallänge abfällt. Der zusätzliche Term \vec{K} in der Impulserhaltung (4.4) beschreibt eine entdimensionierte Volumenkraft pro Masseneinheit. Der Skalierungsfaktor wird dabei so gewählt, dass der Volumenkraftterm in die Größenordnung 1 gebracht wird, gemäß:

$$k_0 = \frac{\mu u_0}{d_0^2}. \quad (4.1)$$

Die Grundgleichungen lauten mit dieser Volumenkraft \vec{K} in *Fidap* für ein inkompressibles

Fluid im zweidimensionalen Fall:

$$\Re\Phi_T = \Delta\Phi, \quad (4.2)$$

$$\nabla \cdot \vec{V} = 0, \quad (4.3)$$

$$Re(\vec{V}_T + (\vec{V} \cdot \nabla)\vec{V}) = -\nabla P + \Delta\vec{V} + Re \cdot \vec{K}, \quad (4.4)$$

$$C_T + (\vec{V} \cdot \nabla)C = \frac{1}{Pe}\Delta C. \quad (4.5)$$

$$(4.6)$$

Um den Wert der Volumenkraft \vec{k} zu bestimmen, werden nur Druckverluste durch Kontraktion und Expansion der Strömung beim Übergang vom Reservoir in den Kanal und umgekehrt betrachtet, da diese maßgeblich sind (vgl. Kapitel 2.4). Für die dimensionsbehaftete Volumenkraft in Kanallängsrichtung ergibt sich mit Gleichung (2.26) der Zusammenhang:¹

$$k_{\vec{x}} = \frac{\Delta p}{l} = \frac{32}{\pi \cdot l} \frac{\mu \bar{v}}{d_0}. \quad (4.7)$$

Eine Abschätzung der sich einstellenden Durchschnittsgeschwindigkeit \bar{v} über den Betrag des angelegten elektrischen Feldes ergibt: $\vec{E}_{\vec{x}} = \frac{100V}{45mm} \approx 2,2kVm^{-1}$. Mit (2.24) und (3.10) folgt dann für die Durchschnittsgeschwindigkeit $\bar{v} \approx 45,6\mu ms^{-1}$. Damit ist nach (2.27) auch der Druckverlust durch Kontraktion und Expansion der Strömung vernachlässigbar, wodurch ein pfropfenförmiges Geschwindigkeitsprofil erwartet werden kann. Als Simulationsgebiet wird der Ausschnitt des Kanals gewählt, der von der Mitte jeweils zehn Kanaldurchmesser d_0 stromauf und zehn Kanaldurchmesser stromab liegt. Der Beginn und das Ende des Simulationsgebietes liegen dabei weit genug von den Reservoiren entfernt, so dass hier eine eingelaufene Strömung angenommen werden kann. Das bedeutet, dass sich die Geschwindigkeit tangential zur Strömungsrichtung nicht ändert und die Geschwindigkeit normal zur Strömungsrichtung verschwindet.

¹In sämtlichen Simulationen dieser Arbeit ist die Dichte auf den Wert eins gesetzt. Ist der Druckverlust über der Länge bekannt, so gilt dann der einfache Zusammenhang $K_{\vec{x}} = \frac{1}{Re} \frac{\Delta P}{L}$ mit dem Druckverlust ΔP über der Kanallänge L .

Die zugehörigen Randbedingungen lauten damit:

$$U_X = 0, \quad (4.8)$$

$$V = 0. \quad (4.9)$$

Am Übergang der Kernströmung zur EDL gelten die Übergangsbedingungen aus der asymptotischen Anpassung nach (3.10) und (3.11). Dabei erweist sich wieder die Einführung eines wandtangentialen Koordinatensystems als zweckmäßig. Nun wird noch eine Übergangsbedingung für das elektrische Potential benötigt. (Barz 2005) findet durch eine asymptotische Anpassung:

$$\Phi_{\tilde{Y}} = 0. \quad (4.10)$$

Dies bedeutet physikalisch, dass kein Strom zwischen Kernströmung und EDL fließt. Da der Potentialabfall im geraden Kanal linear erfolgt, kann die Potentialdifferenz zwischen Beginn und Ende des Kanals näherungsweise bestimmt werden. Dazu wird angenommen, dass das elektrische Potential in den Reservoiren konstant ist und das Potential der entsprechenden Elektrode aufweist. Da dann über der gesamten Kanallänge $l = 45\text{mm}$ ein elektrisches Potential von 100V abfällt, muss über der Länge des Simulationsgebietes $\frac{20d_0}{450d_0} \cdot 100\text{V} = \frac{40}{9}\text{V}$ abfallen. Diese Potentialdifferenz dient der Normierung, so dass am Eingang des Simulationsgebietes ein dimensionsloses Potential von $\Phi_{\text{ein}} = 1$ anliegt. Am Ende des Simulationsgebietes gilt entsprechend $\Phi_{\text{aus}} = 0$. Die Rand- bzw. Übergangsbedingungen sind in Abbildung 4.2 für das Simulationsgebiet zusammenfassend dargestellt.

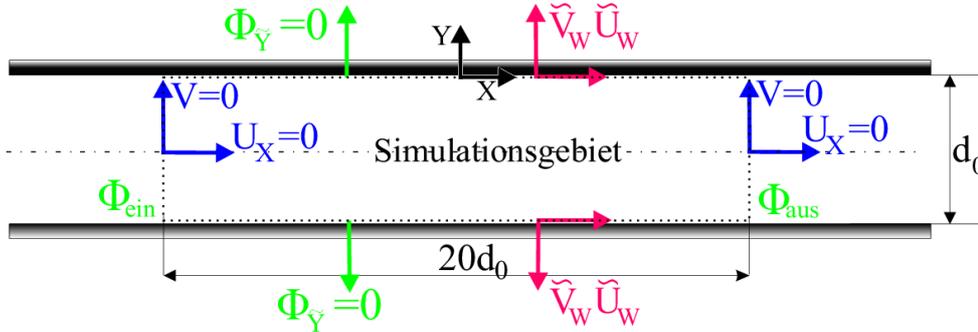


Abbildung 4.2: Simulations- und Randbedingungen für den geraden Mikrokanal.

4.2 Vergleich der Simulation mit der asymptotischen Lösung

Eine Möglichkeit zur Überprüfung der numerischen Ergebnisse (und damit auch der Entdimensionierung des Volumenkraftterms) ist ein Vergleich mit der analytische Näherungslösung für das Geschwindigkeitsprofil einer eingelaufenen elektroosmotischen und druckgetriebenen Kernströmung in einem geraden Kanal von (Ehrhard 2004):

$$U_K(Y) \cong \frac{1}{2} \frac{P_0}{L} \left(\frac{1}{4} - Y^2 \right) - \tilde{U}_W, \quad (4.11)$$

$$V_K(Y) \cong 0. \quad (4.12)$$

Darin sind U_K und V_K die Komponenten des Geschwindigkeitsvektors im Kern der Strömung, P_0 der Druckunterschied über der Länge L und \tilde{U}_W die scheinbare Wandgeschwindigkeit nach (3.10). Für verschiedene Wertepaare der scheinbaren Wandgeschwindigkeit \tilde{U}_W (bzw. des ζ -Potentials) und des Druckgradienten $\frac{P}{L}$ ergibt sich in Abbildung 4.3 eine gute Übereinstimmung zwischen asymptotischer und numerischer Lösung. Bei einer Reynolds-Zahl von $Re = 0,1$ sind alle Abweichungen der in der Abbildung dargestellten Wertepaare kleiner als $10^{-4}\%$. Die Größenordnung der Abweichung bleibt auch dann erhalten, wenn die Reynolds-Zahl variiert wird (bspw. auf $Re = 10^{-3}$). Damit ist gezeigt, dass die Volumenkraft \vec{K} richtig entdimensioniert ist.

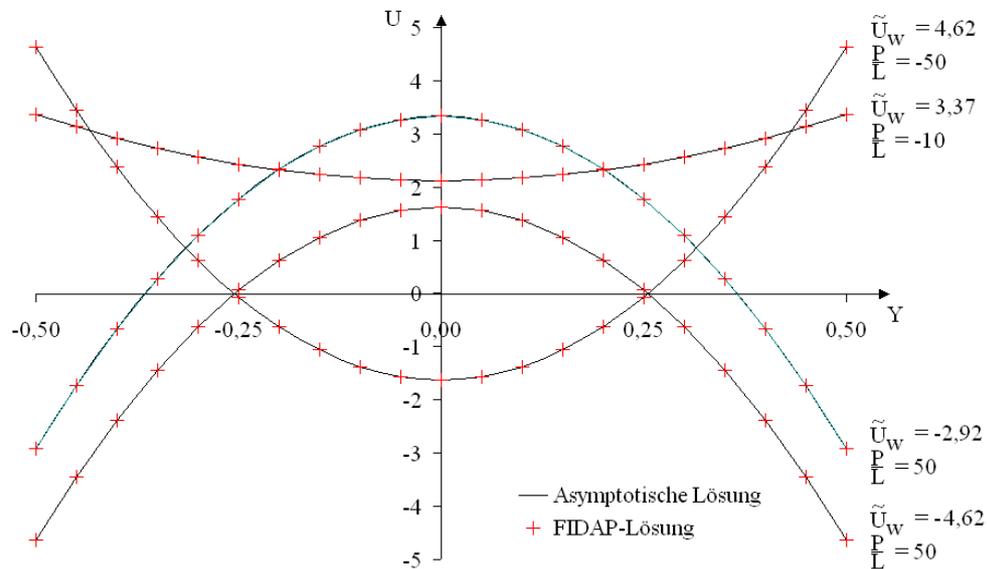


Abbildung 4.3: Geschwindigkeitsprofile über dem Querschnitt, bei einer Überlagerung von elektroosmotischer und druckgetriebener Strömung für verschiedene Kombinationen scheinbarer Wandgeschwindigkeit und angelegtem Druckgradienten bei $Re = 0,1$.

4.3 Vergleich der Simulation mit dem Experiment

Weiterhin können die numerischen Simulationen mit den Messergebnissen von (Matsumoto et al. 2005) verglichen werden. Abbildung 4.4 zeigt diesen Vergleich, wobei bei der numerischen Simulation (blau) die Druckverluste durch Kontraktion und Expansion nach (Zhang et al. 2004) berücksichtigt sind. Die Messergebnisse sind als rote Kreuze dargestellt. Zum Vergleich mit der numerischen Simulation wird die Messung in der mittleren Ebene des Kanals verwendet. Es zeigen sich dabei deutliche Unterschiede zwischen dem simulierten und dem gemessenen Geschwindigkeitsverlauf.

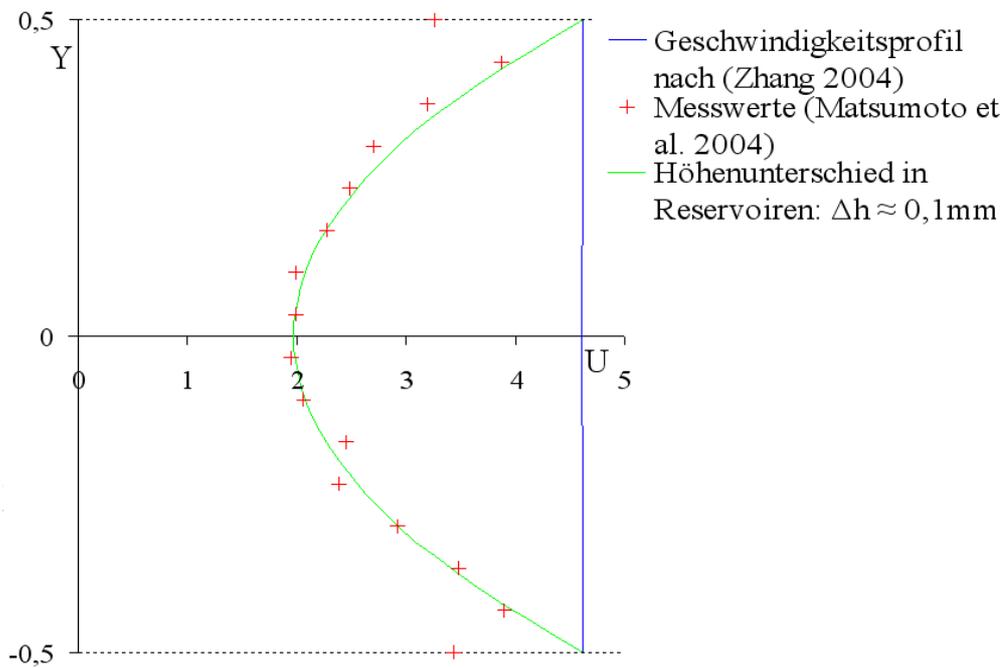


Abbildung 4.4: Geschwindigkeitsprofile über dem Querschnitt: Messung (rot), Theorie (blau) und bei einem angenommenem Höhenunterschied der Flüssigkeiten in den Reservoiren von $\Delta h = 1 \text{ mm}$ (grün).

Die Simulation zeigt ein pfropfenförmiges Geschwindigkeitsprofil. Dies stimmt mit der Abschätzung (2.27) überein, nach der die Verluste durch Kontraktion und Expansion der Strömung durch das große Verhältnis von Kanallänge zu Kanalweite von $\frac{l}{d_0} = 480$ vernachlässigbar sind. Die Ergebnisse des Experimentes weisen jedoch einen deutlichen Geschwindigkeitsverlust zur Mitte des Kanals hin auf. Dieser Unterschied im Geschwindigkeitsprofil zwischen Theorie und Experiment kann verschiedene Ursachen haben:

- Der Flüssigkeitsspiegel in den Reservoiren befindet sich nicht in gleicher Höhe. So würde im Beispiel des untersuchten Kanals bereits ein Höhenunterschied von $\Delta h = \frac{\Delta p}{\Delta x} \frac{l}{\rho g} \approx 0,1 \text{ mm}$ den gemessenen Verlauf des Geschwindigkeitsprofils erklären. Das Geschwindigkeitsprofil, welches sich bei einem solchen Höhenunterschied einstellt, ist als grüne Linie in Abbildung 4.4 dargestellt.
- Elektrophoretischer Einfluss: Zur Visualisierung wird der Flüssigkeit ein Partikel zugegeben, welcher auch eine EDL ausbildet (Matsumoto et al. 2005). Damit wirkt auf die Partikel durch das elektrische Feld eine Kraft entgegen der Fließrichtung des Fluids. Der elektroosmotische Effekt ist nach (Matsumoto et al. 2005) aber größer.

Kapitel 5

Mikromischer

In diesem Kapitel werden zunächst die Ergebnisse der Simulation des Mikromischers nach dem Aufbau von (Matsumoto et al. 2005) vorgestellt. Aus den Ergebnissen ist ersichtlich, dass der Mischer aus verschiedenen Gründen nicht optimal betrieben wird. Daher werden einige Verbesserungsvorschläge zu der Betriebsweise gemacht. Es wird der Einfluss des Winkels, unter dem die beiden Eingangskanäle zusammenlaufen, mit verschiedenen Bewertungskriterien untersucht. Es wird zusätzlich der Einfluss des Geschwindigkeitsprofils im Ausgangskanal auf die Mischgüte betrachtet.

5.1 Simulation eines existierenden Mikromischers

Zunächst wird der Mischer simuliert, der von (Matsumoto et al. 2005) realisiert ist. Dazu ist es notwendig den Aufbau zu beschreiben. Es handelt sich dabei um einen Y-förmigen Mischer, dessen beide Eingangskanäle einen Winkel von $\alpha = 40^\circ$ zueinander besitzen und an deren Kreuzungsbereich ein Ausgangskanal anschließt. Die Kanalweite beträgt dabei stets $d_0 = 100\mu m$ und die Kanalhöhe jeweils $h = 50\mu m$. Die Längen der Kanäle können Abbildung 5.1 entnommen werden. An alle Kanäle schließen Reservoirs mit einem Innendurchmesser von $1cm$ an. In jedes Reservoir ist eine Platinelektrode eingebracht, wobei zwischen einer Elektrode im Eingangsreservoir und an der Elektrode im Ausgangsreservoir eine Potentialdifferenz von $\Delta\varphi = 1kV$ anliegt. Die Elektrode im anderen Eingangsreservoir ist dann von der Spannungsquelle getrennt. Die Anordnung wird mit einer Frequenz von $f = 0,5Hz$ betrieben.

In das untere Eingangsreservoir wird eine $2 \cdot 10^{-5}$ molare Lösung des Fluoreszenzfarbstoff Rhodamin B (Flüssigkeit B) eingeführt und im oberen (Flüssigkeit A) entionisiertes reines

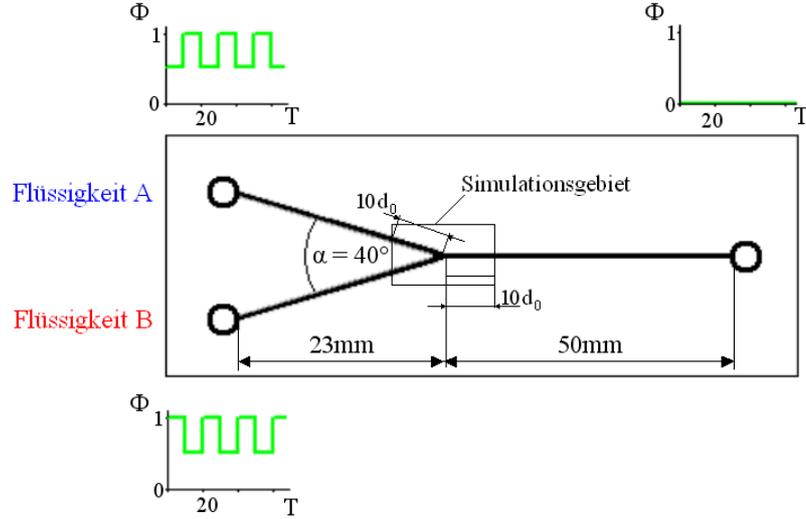


Abbildung 5.1: Aufbau des Y-förmigen Mischers.

Wasser. Im Ausgangsreservoir wird die vermischte Flüssigkeit gesammelt. Die Diffusionskonstante D wird von (Matsumoto et al. 2005) über Messungen der elektrischen Leitfähigkeit mit Hilfe der Nernst-Einstein-Gleichung

$$D = \frac{R\vartheta\sigma}{\mathcal{F}^2 z^2 c} \quad (5.1)$$

zu $D = 3,0 \cdot 10^{-9} m^2 s^{-1}$ berechnet. Dabei ist D die Diffusionskonstante, R die ideale Gaskonstante, ϑ die Temperatur, σ die elektrische Leitfähigkeit, \mathcal{F} die Faradaysche Konstante und c die molare Konzentration. Der elektroosmotischen Strömung ist stets eine druckgetriebene Strömung mit einer mittleren Geschwindigkeit am Ausgang von $\bar{u}_{PDF} = 1 mm s^{-1}$ überlagert. Für das ζ -Potential wird der Wert übernommen, der im geraden Kanal bestimmt wurde ($\zeta = -31 mV$). Damit ergibt sich für die Strouhal-Zahl ein Wert von $Str = 8,9 \cdot 10^{-3}$.

Wie in Kapitel 4.1 kann auch hier nicht das vollständige Simulationsgebiet simuliert werden (vgl. Abbildung: 5.2). Das Simulationsgebiet besteht daher nur aus Teilen der Eingangskanäle und des Ausgangskanals. Ausgehend vom Kreuzungsmittelpunkt beträgt die jeweilige Länge $10d_0$. Damit kann eine eingelaufene Strömung als Randbedingung für die Geschwindigkeitskomponenten an jedem Eingang und am Ausgang angenommen werden. An den restlichen Grenzen des Rechengebietes werden die Übergangsbedingungen (3.10) und (3.11) verwendet. Weiterhin ist die Kenntnis der Potentialverteilung notwendig. Diese kann bei einer Geometrie mit einem Kreuzungsgebiet aber nicht mehr als linear angenommen werden. Eine einfache Berechnung der Potentiale am Ein- und Ausgang des Simulationsgebietes ist daher nicht möglich. Deshalb wird für die gesamte Kanalgeometrie eine Simulation der

Potentialverteilung durchgeführt. Da die Abmessungen der Reservoirs um mehrere Größenordnungen über der Kanalweite liegen, wird davon ausgegangen, dass in den Reservoirs kein Potentialabfall vorhanden ist. (Bei dieser separaten Simulation liegt die numerische Abweichung bei weiterer örtlicher Diskretisierung unter 1%). Aus der Simulation werden dann die entsprechenden Werte des elektrischen Potentials übernommen. An den Eingängen ergibt sich dabei ein rechteckförmiger Verlauf des Potentials, wie in Abbildung 5.1 dargestellt. Anschließend erfolgt eine Reskalierung des Potentials auf eine Differenz von $\Delta\Phi = 1$ im eingeschränkten Rechengebiet. Wie im Falle des geraden Kanals, fließt auch hier kein Strom zwischen EDL und Kernströmung und es gilt dort $\Phi_Y = 0$. Da auch kein Stoff über die EDL transportiert wird, gilt dort $C_Y = 0$.

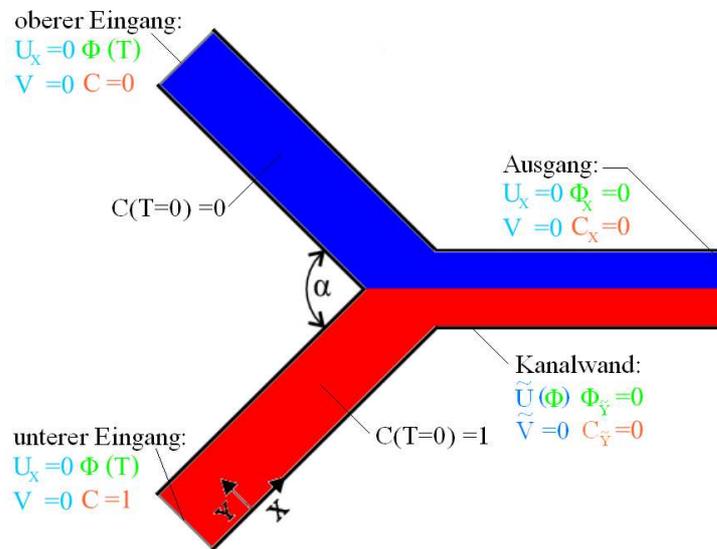


Abbildung 5.2: Rand- und Anfangsbedingungen des Y-förmigen Mischers.

Die Konzentration wird als Randbedingung am oberen Eingang auf $C = 0$ gesetzt, da durch diesen Eingang nur Wasser strömt und am unteren Kanaleingang auf den Wert $C = 1$, da hier die maximale Konzentration von Rhodamin B vorliegt. Am Ausgang werden die örtlichen Ableitungen der Konzentration $C_X = 0$ gesetzt. Damit tritt zwar noch Stoff durch Konvektion aus, aber nicht mehr durch Diffusion. Diese Randbedingung gibt die physikalischen Vorgänge nur näherungsweise wieder, eine Simulation mit einem um 75% verlängerten Ausgangskanal ergibt jedoch eine Abweichung von unter 1%. Damit ist das Fehlen der Diffusion unbedeutend. Als Anfangsbedingung für die Konzentration in der unteren Hälfte des Mischers wird $C(T = 0) = 1$ verwendet und in der oberen Kanalhälfte $C(T = 0) = 0$.

5.2 Ergebnisse der Simulation

Zunächst werden Simulationen durchgeführt, die den Bedingungen von (Matsumoto et al. 2005) entsprechen. Abbildung 5.3 zeigt die simulierte Potentialverteilung zum Zeitpunkt $T = 15$. Dabei entspricht die Farbe rot einem Potential von $\Phi = 1$ und die Farbe blau dem Potential $\Phi = 0$. Zusätzlich sind Isopotentiallinien als schwarze Linien eingezeichnet. Zu diesem Zeitpunkt befindet sich das obere Reservoir auf dem hohen elektrischen Potential, während das untere Reservoir von der Spannungsquelle getrennt ist. Es ist deutlich zu erkennen, dass im unteren Eingangskanal das Potential konstant ist. Dadurch liegt hier kein elektrisches Feld vor, wodurch auch kein elektroosmotischer Beitrag zur Geschwindigkeit zu erwarten ist. Im oberen Eingangskanal und im Ausgangskanal stellt sich ein linearer und eindimensionaler Potentialverlauf ein. Im Kreuzungsgebiet stellt sich ein zweidimensionaler und nichtlinearer Verlauf des elektrischen Potentials ein.

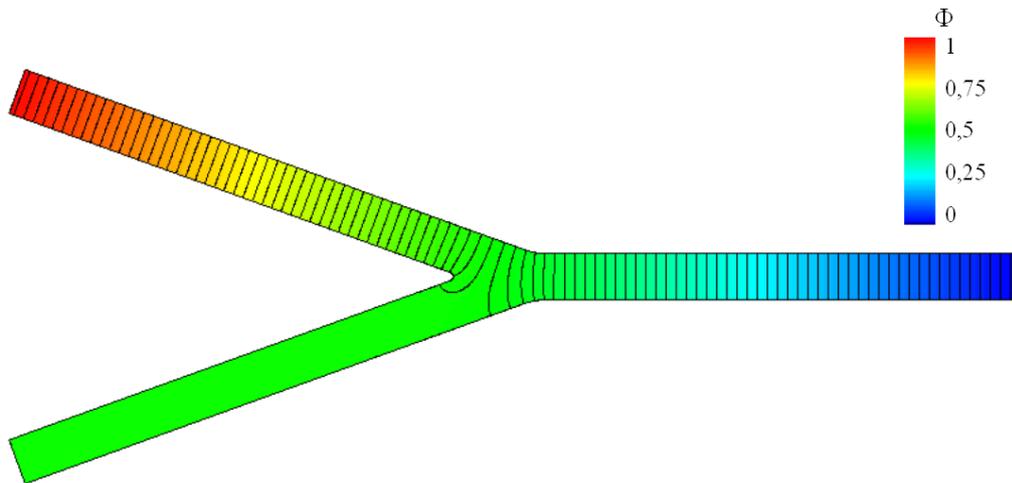


Abbildung 5.3: Elektrische Potentialverteilung des Y-Mischers zum Zeitpunkt $T = 15$.

Deshalb sind in Abbildung 5.4 die elektrischen Isopotentiallinien im vergrößerten Kreuzungsgebiet dargestellt. Die Isopotentiallinien liegen an dem spitzen Winkel im Bereich der Kanalzusammenführung am dichtesten. Dies bedeutet, dass dort das elektrische Feld am höchsten ist und damit auch die höchste elektroosmotische Geschwindigkeit erwartet werden kann.

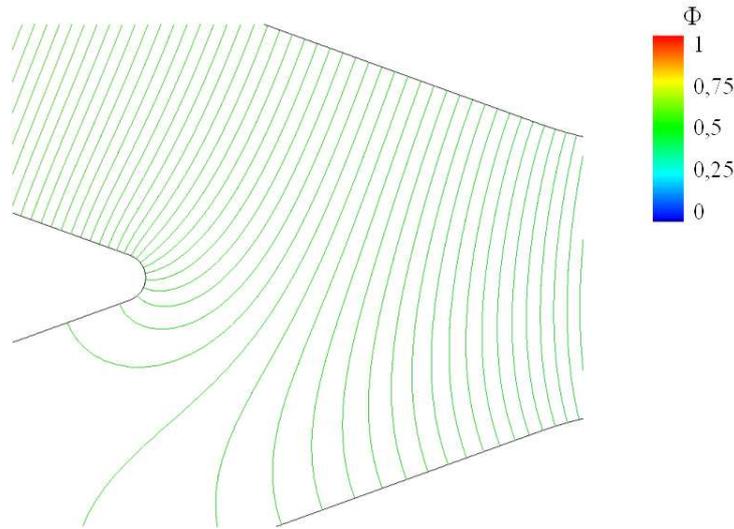


Abbildung 5.4: Elektrische Isopotentiallinien im Kreuzungsgebiet zum Zeitpunkt $T = 15$.

Die Strömung setzt sich aus einem elektroosmotischen und einem druckgetriebenen Anteil zusammen. Die druckgetriebene Strömung verursacht im Ausgangskanal eine mittlere Strömung von $|\vec{V}|_{PDF} = 1$. In den beiden Eingangskanälen beträgt dieser Wert jeweils die Hälfte. Abbildung 5.5 zeigt die Stromlinien und die jeweiligen Geschwindigkeitsprofile über dem Kanalquerschnitt an den Eingängen und am Ausgang zum Zeitpunkt $T = 15$. Das Profil im unteren Eingangskanal entspricht einer Poiseuille-Strömung, da dort kein elektrisches Feld vorhanden ist und somit an der „Wand“ die Geschwindigkeit $\vec{V} = 0$ vorliegt. Im oberen Eingangskanal ist dieser parabolische Anteil durch den elektroosmotischen Effekt auf der Ordinate nach oben verschoben. Dies bedeutet, dass durch den Eingangskanal mit elektrischem Feld (zu diesem Zeitpunkt der obere Eingangskanal) mehr Flüssigkeit transportiert wird. Das Geschwindigkeitsprofil im Ausgang ergibt sich durch die Überlagerung der beiden Profile an den Eingängen, also ein doppelter druckgetriebener Anteil und der entsprechende elektroosmotische Anteil. Dies stellt einen konstruktiven Mangel dar, da durch die Addition von druckgetriebener und elektroosmotischer Strömung die Verweilzeit der Flüssigkeiten im Ausgangskanal verkürzt wird.

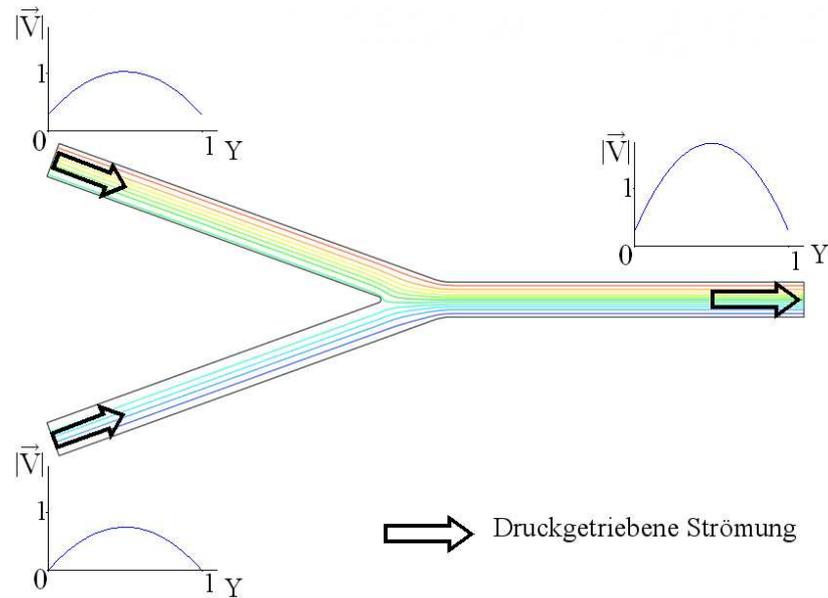


Abbildung 5.5: Stromlinien und Geschwindigkeitsprofile des untersuchten Mischers zum Zeitpunkt $T = 15$.

Um die Vermischung bewerten zu können, muss die Verteilung der Konzentration betrachtet werden. Diese ist in Abbildung 5.6 zum Zeitpunkt $T = 15$ dargestellt. Dabei ist der Anteil der Flüssigkeit mit der Konzentration $C = 0$ blau und der Anteil mit $C = 1$ rot eingefärbt. Die Farbe Grün steht für einen Bereich von etwa $0,4 < C < 0,6$ und damit für eine gute Durchmischung, welche eine Folge der hier vorliegenden hohen Diffusionskonstante D ist. Um eine bessere Bewertung vornehmen zu können, wird die Farbskala auf einen Bereich von $0,4 < C < 0,6$ eingeschränkt und die Isokonzentrationslinie $C = 0,5$ als schwarze Linie eingezeichnet. Diese entspricht dem Verlauf der Kontaktfläche unter Berücksichtigung der Diffusion.

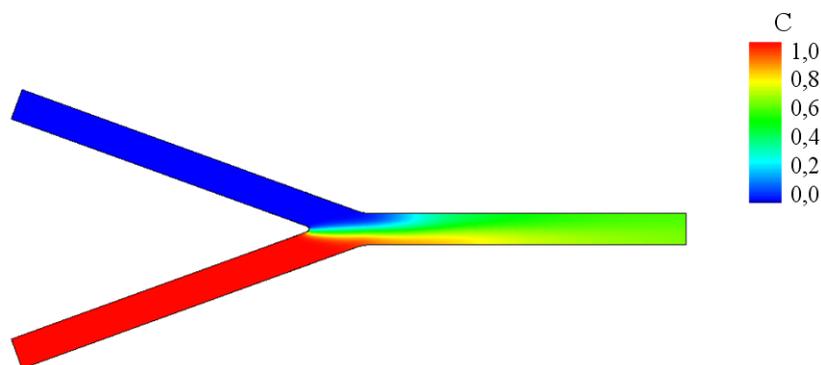


Abbildung 5.6: Konzentrationsverteilung des untersuchten Mischers zum Zeitpunkt $T = 15$.

Abbildung 5.7 zeigt die Konzentrationsverteilungen zu verschiedenen Zeitschritten. Zur Einordnung der abgebildeten Zeitschritte ist das elektrische Potential am unteren Reservoir aufgetragen. Zum Zeitpunkt $T = 10$ (entspricht $t = 1,0s$) ist die Flüssigkeit, welche durch die Anfangsbedingungen festgelegt wurde, im Mittel aus dem simuliertem Gebiet herausgetragen. Anhand der Konzentrationsbilder ist klar zu erkennen, dass mit den gewählten Parametern keine gute Vermischung zu erzielen ist. Die Isokonzentrationslinie wird zwar „gekümmert“, jedoch sind augenscheinlich die axialen Geschwindigkeiten bzw. die Wellenlängen der Isokonzentrationslinien zu hoch (und damit die Frequenz der Erregung zu niedrig). Dadurch entstehen Pfropfen aus vermischter bzw. unvermischter Flüssigkeit, die durch den Ausgangskanal transportiert werden. Dabei beträgt die Länge eines Pfropfens aus nur wenig vermischter Flüssigkeit etwa $10d_0$ und die Länge eines Pfropfens mit einer höheren Vermischung etwa $5d_0$. Eine wellenförmige Auffaltung der Isokonzentrationslinie tritt bei dem vorliegenden Verhältnis von elektroosmotischer zu druckgetriebener Geschwindigkeit im gesamten Mischergebiet nicht auf.

Die Betriebsweise, in welcher der Mischer bei (Matsumoto et al. 2005) betrieben wird, ist für eine effektive Durchmischung damit aus drei Gründen ungeeignet:

- Der Mischer arbeitet in einer Betriebsweise, in der Pfropfen der Länge $10d_0$ produziert werden. In diesen Bereichen ist jeweils einer der beiden Stoffe in erhöhter Konzentration vorhanden. Weiterhin bricht die Isokonzentrationslinie ab, über welche die Durchmischung ablaufen soll.
- Im Ausgangskanal überlagert sich die elektroosmotische mit der druckgetriebenen Strömung. Dadurch wird die Verweilzeit im Ausgangskanal abgesenkt und damit auch die Zeit, in welcher die Diffusion des Stoffes stattfinden kann.
- Die elektroosmotische Geschwindigkeit ist im Vergleich zur druckgetriebenen zu klein. Eine nennenswerte Auffaltung der Isokonzentrationslinie findet nicht statt.

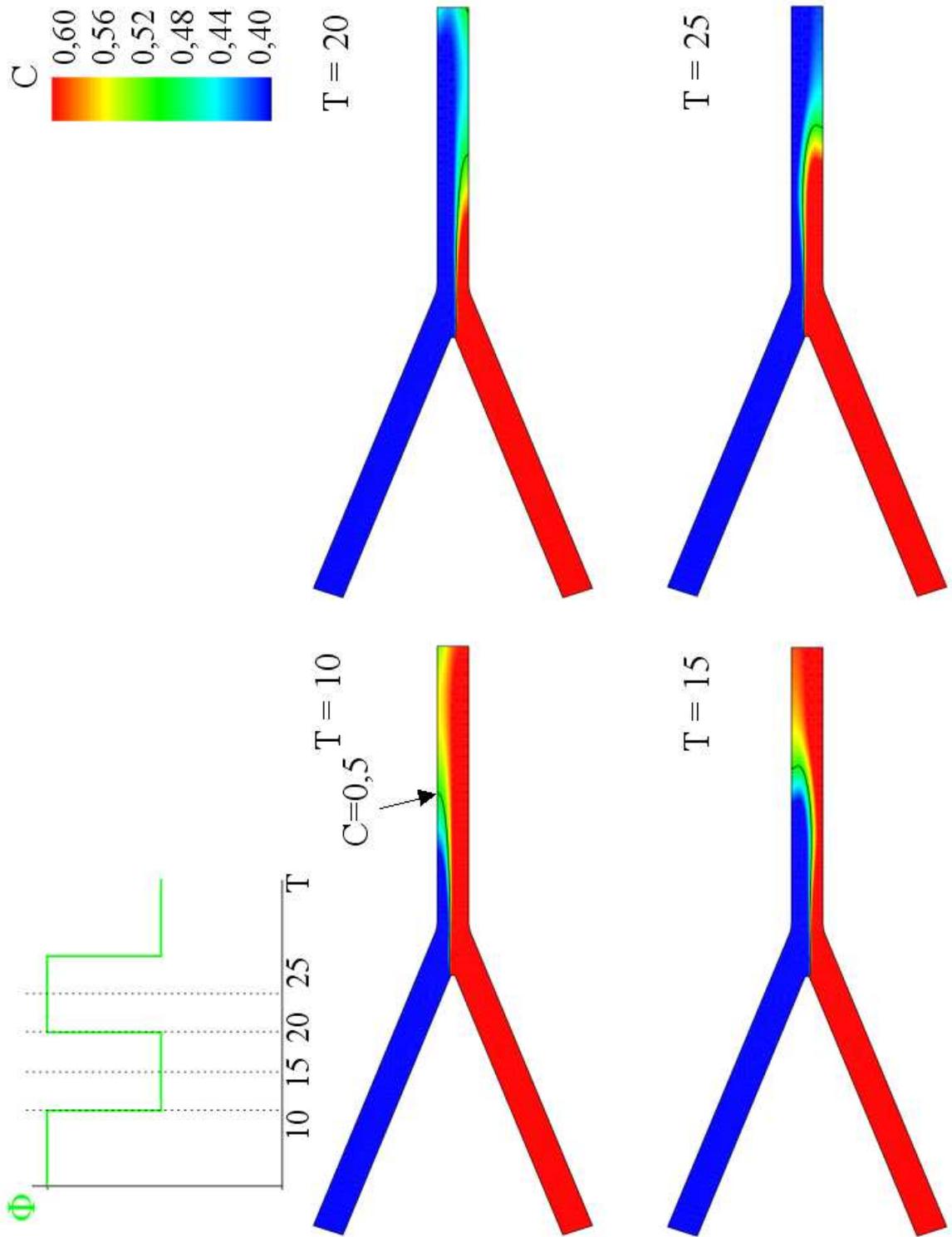


Abbildung 5.7: Konzentrationsverteilungen des Y-förmigen Mischers zu den Zeitpunkten $T = 10, 15, 20, 25$. Dargestellt ist auch die Isokonzentrationslinie $C = 0,5$ (schwarze Linie) und das angelegte Potential am unteren Eingangsreservoir $\Phi(T)$.

5.3 Einfluss der Frequenz auf den Verlauf der Isokonzentrationslinie

Das größte der weiter vorne genannten Probleme ist, dass die Substanzen in Pfropfen verschiedener Konzentrationen ausgetragen werden und dadurch der Mischer nicht optimal betrieben wird. Dieses Problem kann durch eine Erhöhung der Frequenz behoben werden, mit welcher das elektrische Potential zwischen den beiden Eingangsreservoirs oszilliert. Für die Frequenz darf aber kein beliebig hoher Wert gewählt werden. Soll nämlich die gesamte Flüssigkeit dem elektrischen Feld folgen, muss dabei die Trägheit der Flüssigkeit berücksichtigt werden. Um den Einfluss der Trägheit zu betrachten, wird der Mischer im Folgenden rein elektroosmotisch betrieben, das heißt die druckgetriebene Strömung ist ausgeschaltet. Die Verteilung des elektrischen Potentials ist in den hier diskutierten Fällen unabhängig davon, ob eine druckgetriebene Strömung vorliegt oder nicht. Daher ist die Potentialverteilung eines rein elektroosmotisch betriebenen Mikromischers identisch mit der in Abbildung 5.3 und 5.4. Werden bestimmte Voraussetzungen in der Strömung erfüllt, sind die elektrischen Isopotentiallinien und die Stromlinien stets senkrecht zueinander. Die notwendigen Voraussetzungen sind dabei ein gleiches Niveau des Gesamtdrucks an den Ein- und Ausgängen, eine kleine Debye-Länge l_D , ein quasistationäres elektrisches Feld, und die Quellenfreiheit der Strömung (Cummings, Griffiths, Nilson und Paul 2000).

Die kleine Reynolds-Zahl von $Re \approx 0,1$ legt nahe, dass eine reibungsdominierte Strömung vorliegt, bei der Trägheitseffekte eine nur untergeordnete Rolle spielen. Dies lässt sich am Verlauf der Geschwindigkeit bei Beschleunigung der Flüssigkeit aus der Ruhe durch das Einschalten des elektrischen Feldes gemäß Abbildung 5.8 erkennen. Darin ist die Horizontalkomponente U der Geschwindigkeit über dem Kanalquerschnitt am Ausgang aufgetragen. Dabei werden die wandnahen Schichten schneller auf die Endgeschwindigkeit beschleunigt als die in der Mitte des Kanals. Nach $T = 0,45$ hat das Geschwindigkeitsprofil etwa den stationären Wert angenommen. Bei einer Erhöhung der Frequenz muss beachtet werden, dass die Trägheit des Fluids einer Totzeit entspricht, die kleiner als die halbe Periodendauer sein muss. Für eine effektive Mischung sollte daher folgender Maximalwert der Frequenz nicht überschritten werden:

$$F_{max} \approx \frac{1}{2 \cdot 0,5} = 1. \quad (5.2)$$

Dabei ist die Frequenz F mit der charakteristischen Zeitskala entdimensioniert und $F = 1$ entspricht der dimensionsbehafteten Frequenz $f = 10Hz$.

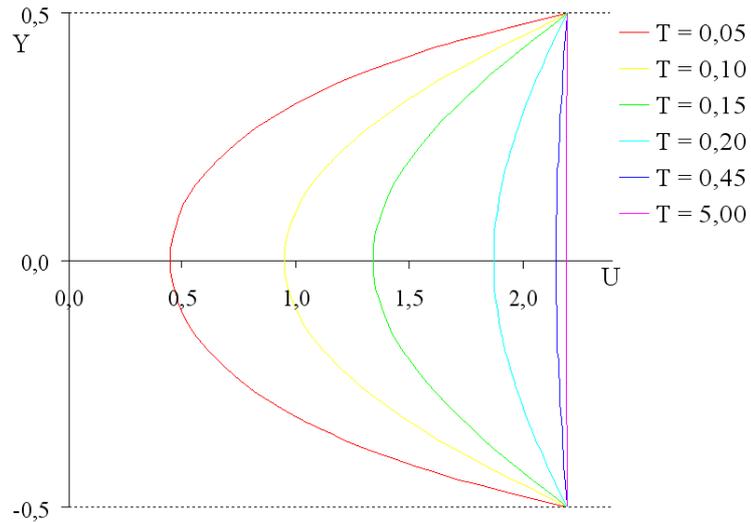


Abbildung 5.8: Geschwindigkeitsprofile am Ausgang zu verschiedenen Zeitpunkten T nach dem Einschalten des elektrischen Feldes.

In Abbildung 5.9 ist der Verlauf der Isokonzentrationslinie $C = 0,5$ bei einer dimensionslosen Frequenz von $F = 5$ ($f = 50\text{Hz}$) dargestellt. Diese entspricht etwa der Kontaktfläche. Die Ausschläge der Isokonzentrationslinie um die Mittellinie des Ausgangskanals sind sehr klein. Das Fluid folgt also nicht in ausreichendem Maße dem elektrischen Feld. Die Kontaktfläche vergrößert sich somit kaum, da die Frequenz zu groß ist. Die halbe Periodendauer dieser Schwingung entspricht allem Anschein nach der Totzeit des Systems.

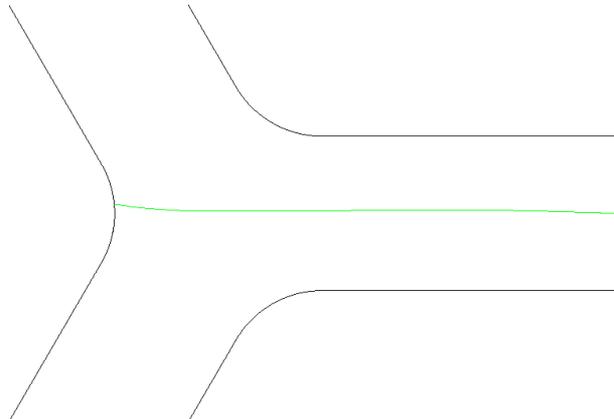


Abbildung 5.9: Isokonzentrationslinie $C = 0,5$ (grün) eines Y-förmigen Mischers bei einer Anregungsfrequenz von $F = 5$.

Die Frequenz wird nun gegenüber der von (Matsumoto et al. 2005) verwendeten Frequenz um den Faktor zehn auf $F = 0,5$ erhöht. Die Konzentrationsverteilung ist in Abbildung 5.10 mit der eingeschränkten Skala $0,4 < C < 0,6$ dargestellt. Die Isokonzentrationslinie (und damit die Kontaktfläche) zwischen den beiden zu mischenden Fluiden zeigt nun den gewünschten wellenförmigen Verlauf. In Abbildung 5.11 ist der Betrag des Gradienten der Konzentrationsverteilung dargestellt, der mit dem Maximalwert normiert ist. Erwartungsgemäß befindet sich das Maximum im Bereich der Kreuzung, da hier die Durchmischung am geringsten ist. Der Betrag des Gradienten nimmt sehr schnell ab. Nach etwa fünf Kanaldurchmessern findet sich ein gleichmäßiger Betrag des normierten Konzentrationsgradienten über der Kanalweite. Dies ist ein Indiz dafür, dass bei der hier vorliegenden hohen Diffusionskonstante D die Mischgüte schnell unabhängig von der Kontaktflächenlänge wird.

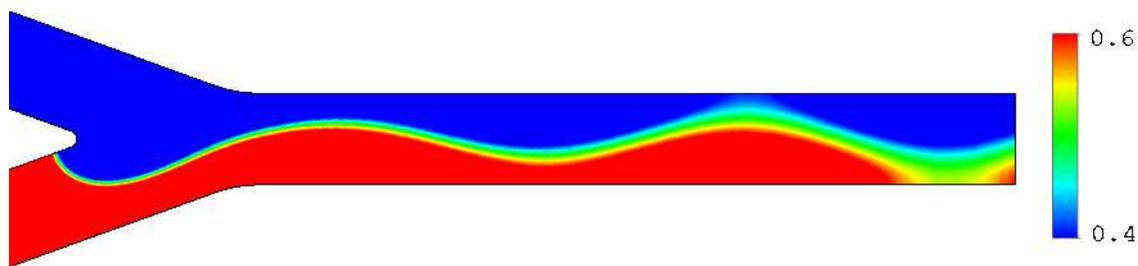


Abbildung 5.10: Konzentrationsverteilung eines rein elektroosmotisch betriebenen Mikromischers bei einer Frequenz von $F = 0,5$.

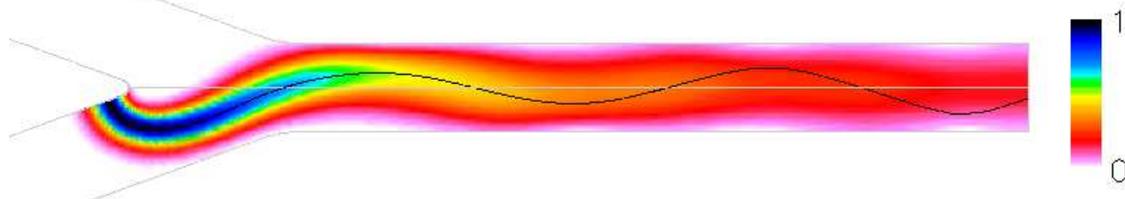


Abbildung 5.11: Normierter Betrag des Konzentrationsgradienten und Isokonzentrationslinie $C = 0,5$ (schwarz).

Das Auftreten von „Konzentrationspfropfen“, welche sich bei einer Betriebsweise nach (Matsumoto et al. 2005) ergeben, kann daher durch eine Erhöhung der Frequenz vermieden werden. Eine Erhöhung um den Faktor zehn führt zu einem sinusförmigen Verlauf der Kontaktfläche, wodurch diese vergrößert wird.

5.4 Weitere Einflüsse auf die Vermischung

In den vorherigen Kapiteln wurde der Einfluss der Frequenz auf den Betrieb des Mischers gezeigt. Eine Variation dieser ist jedoch nicht die einzige Maßnahme, die zu einer Verbesserung eingesetzt werden kann. Im Hinblick auf die Überlagerung der elektroosmotischen und der druckgetriebenen Strömung im Ausgangskanal, erscheint eine Modifikation der Schaltung als naheliegend. Bisher wurde die Potentialdifferenz zwischen jeweils einem Eingangsreservoir und dem Ausgangsreservoir angelegt. Es erscheint jedoch sinnvoll, die elektrische Steuerung so zu gestalten, dass ein frei wählbares Verhältnis von Querströmung zu Hauptströmung realisiert werden kann. Dazu wird zwischen den Eingängen und dem Ausgang eine Druckdifferenz so angelegt, dass sich eine mittlere Geschwindigkeit im Ausgangskanal von $\bar{U}_{PDF} = 1$ einstellt. Eine elektroosmotische, quer zur Hauptströmung oszillierende Strömung, wird durch das Anlegen einer oszillierenden Potentialdifferenz zwischen den beiden Eingangskanälen erzeugt. Das Ausgangsreservoir ist dabei stets von der Spannungsquelle getrennt. Ein Schema dieser modifizierten elektrischen Schaltung ist in Abbildung 5.12 dargestellt.

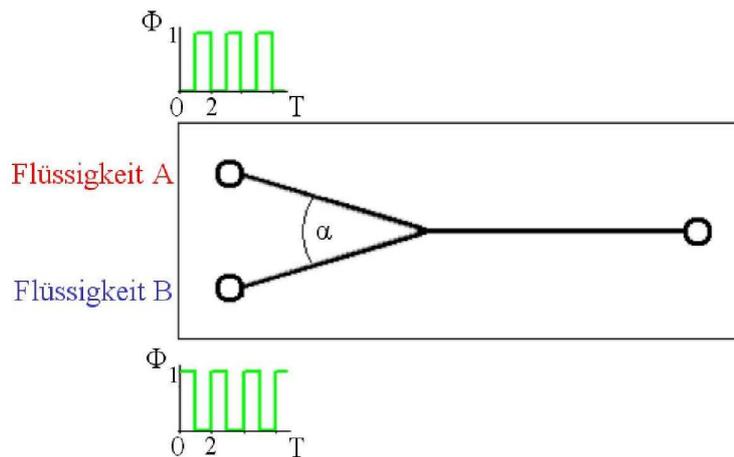


Abbildung 5.12: Modifikation der elektrischen Schaltung.

Das dritte Problem, der geringe Einfluss der Elektroosmose auf den Kontaktflächenverlauf, kann durch eine Erhöhung der elektroosmotischen Geschwindigkeit \vec{V}_{EOF} gelöst werden. Dazu wird die Potentialdifferenz so gewählt, dass sich $|\vec{V}|_{EOF} = 2\bar{U}_{PDF}$ einstellt. Durch diese veränderte Anordnung wird die das Problem beschreibende Strouhal-Zahl etwa um den Faktor hundert auf $Str = 1$ erhöht, wodurch eine Verbesserung der Vermischung erwartet werden kann (MacInnes, Du und Allen 2003). Weiterhin ist bekannt, dass Mischer mit einer T-förmigen Zuführung einen für die Mischgüte günstigeren Kontaktflächenverlauf haben als Y-förmige (?). Es stellt sich somit die Frage, ob eine weitere Erhöhung des Winkels der Ein-

gangskanäle, eine weitere Verbesserung bewirkt. Dazu werden drei Mischer untersucht, bei denen der Winkel stets erhöht wird. Im weiteren Verlauf dieses Kapitels werden zunächst die Geometrien und die Diskretisierung der einzelnen Mischer vorgestellt und beispielhaft die Verteilung des elektrischen Potentials und die daraus resultierenden Stromlinien und Geschwindigkeitsprofile gezeigt. Anschließend werden die Ergebnisse der Geschwindigkeiten und der Konzentrationen gegenübergestellt und die Vermischung mit unterschiedlichen Kriterien bewertet.

5.4.1 Geometrien und örtliche Diskretisierungen

Die untersuchten Mischergeometrien und ihre Abmessungen sind in Abbildung 5.13 abgebildet. Die Mischer bestehen wieder aus drei Kanälen, jeweils zwei Eingangskanälen und dem Ausgangskanal. Alle Mischer weisen die gleiche Kanalweite d_0 auf. Die Länge des jeweiligen Kanalausschnittes beträgt $10d_0$. Im Eingang 1 tritt reines Wasser ein ($C = 0$) und im Eingang 2 Wasser mit der Konzentration $C = 1$. Die Eingangskanäle haben dabei folgende Winkel zueinander: $\alpha_Y = 120^\circ$ für den Y-förmigen Mischer, $\alpha_T = 180^\circ$ für den T-förmigen Mischer und $\alpha_\varepsilon = 280^\circ$ für den ε -förmigen Mischer.

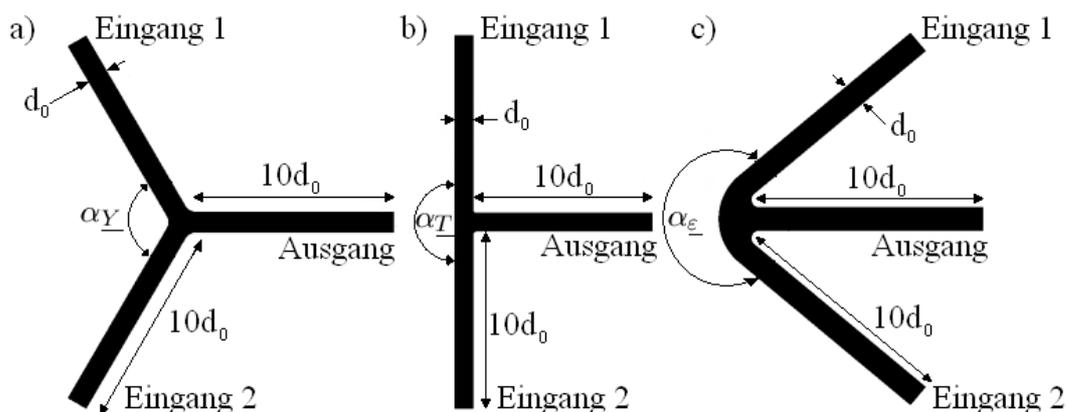


Abbildung 5.13: Abmaße der drei untersuchten Mischergeometrien.

Die Kanäle bestehen aus strukturierten Netzen und der Kreuzungsbereich aus einem unstrukturierten Netz (vgl. Abbildung: 5.14). Dabei ist in den Kanälen jeweils die gleiche Anzahl an Elementen vorhanden, womit unterschiedliche numerische Diffusion in diesen Gebieten vermieden werden soll. Sämtliche Kanten im Kreuzungsgebiet sind abgerundet, damit bei der Bestimmung des elektrischen Feldes keine Unstetigkeiten auftreten.

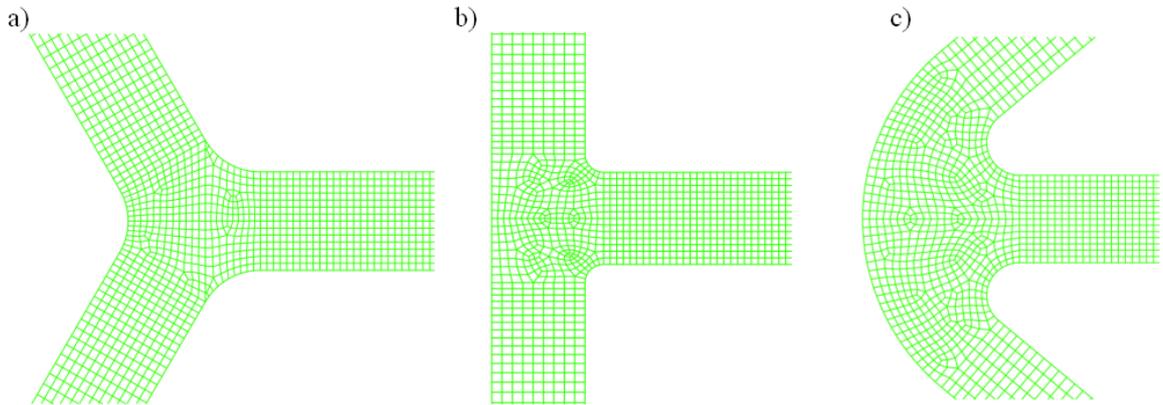


Abbildung 5.14: Örtliche Diskretisierung der drei Mischergeometrien.

5.4.2 Potentialverteilung

In diesem Abschnitt wird der Verlauf des elektrischen Potentials beispielhaft am Y-förmigen Mischer diskutiert. Auf die Darstellung der Ergebnisse der anderen Mischer wird verzichtet, weil die Verläufe nur unwesentlich variieren. Abbildung 5.15 zeigt die Potentialverteilung und die überlagerten Isopotentiallinien zum Zeitpunkt $T = 25$. Zu diesem Zeitpunkt befindet sich der untere Eingang auf dem hohen Potential und der obere Eingang auf dem niedrigen Potential. Das mit dem Ausgang verbundene Reservoir ist von der Spannungsquelle getrennt. Das elektrische Potential fällt in den Bereichen der beiden Eingangskanäle wie in Abbildung 5.3 und 5.4 linear und eindimensional ab. Die Potentialverteilung im Kreuzungsgebiet ist bei jeder der untersuchten Mischergeometrien nichtlinear. Durch die modifizierte elektrische Schaltung ist der Ausgangskanal feldfrei, da er sich auf konstantem elektrischen Potential befindet. Es können in den Eingangskanälen überlagerte Geschwindigkeitsprofile aus elektroosmotischer und druckgetriebener Strömung erwartet werden. Im Ausgangskanal wird jedoch aufgrund des konstanten Potentials eine rein druckgetriebene Strömung vorhanden sein.

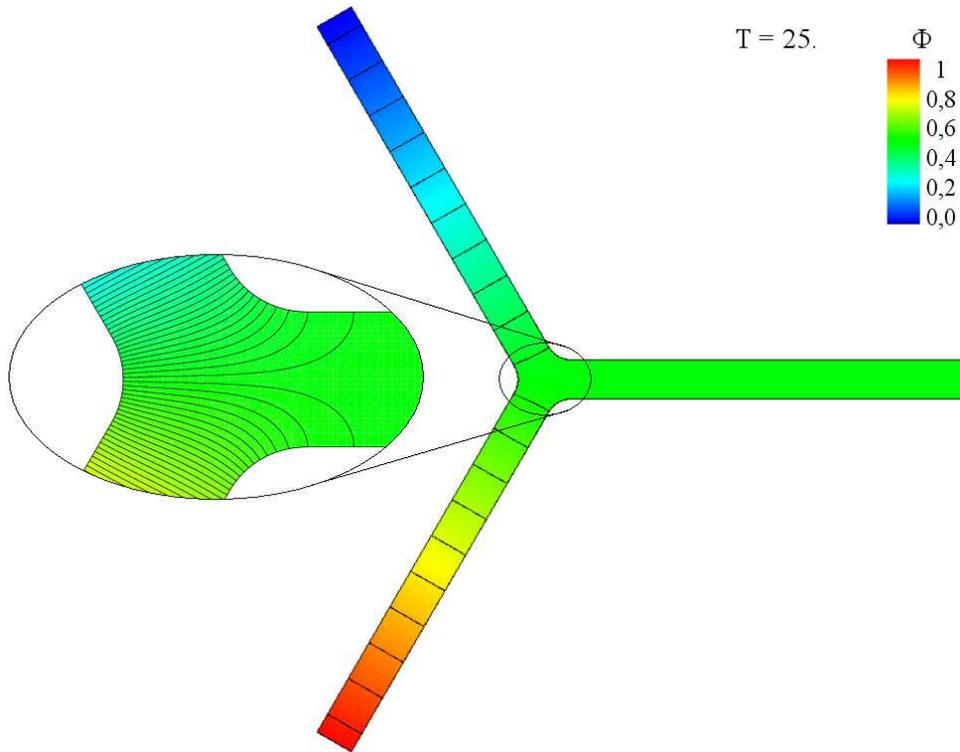


Abbildung 5.15: Elektrisches Potential und Isopotentiallinien im Y-förmigen Mischer zum Zeitpunkt $T = 25$.

5.4.3 Geschwindigkeitsverteilungen und Stromlinien

Abbildung 5.16 zeigt die Verteilung der absoluten Geschwindigkeit sowie die Stromlinien für den Y-förmigen Mischer. Der abgebildete Zeitpunkt ist $T = 25$, entsprechend der Potentialverteilung in Abbildung 5.15. Die druckgetriebene Strömung wird auch hier über einen zusätzlichen Volumenkraftterm realisiert. Damit sind die Geschwindigkeitsprofile über der Kanalweite d_0 in Abbildung 5.16 keine Randbedingungen, sondern die sich einstellenden Geschwindigkeiten an den Eingängen und dem Ausgang. Die elektroosmotische Strömung ist zu diesem Zeitpunkt von Eingang 2 zu Eingang 1 gerichtet. Damit ergibt sich das Geschwindigkeitsprofil an Eingang 2 aus einer Addition des elektroosmotischen Anteils (einem Rechteck mit $|\vec{V}| = 2$) und der Parabel aus dem druckgetriebenen Beitrag. Am Eingang 1 erfolgt die druckgetriebene Strömung in Richtung des Ausgangs, die elektroosmotische Strömung überwiegt jedoch und befördert die Flüssigkeit aus dem Simulationsgebiet heraus, was zu einem konkaven Geschwindigkeitsprofil führt.

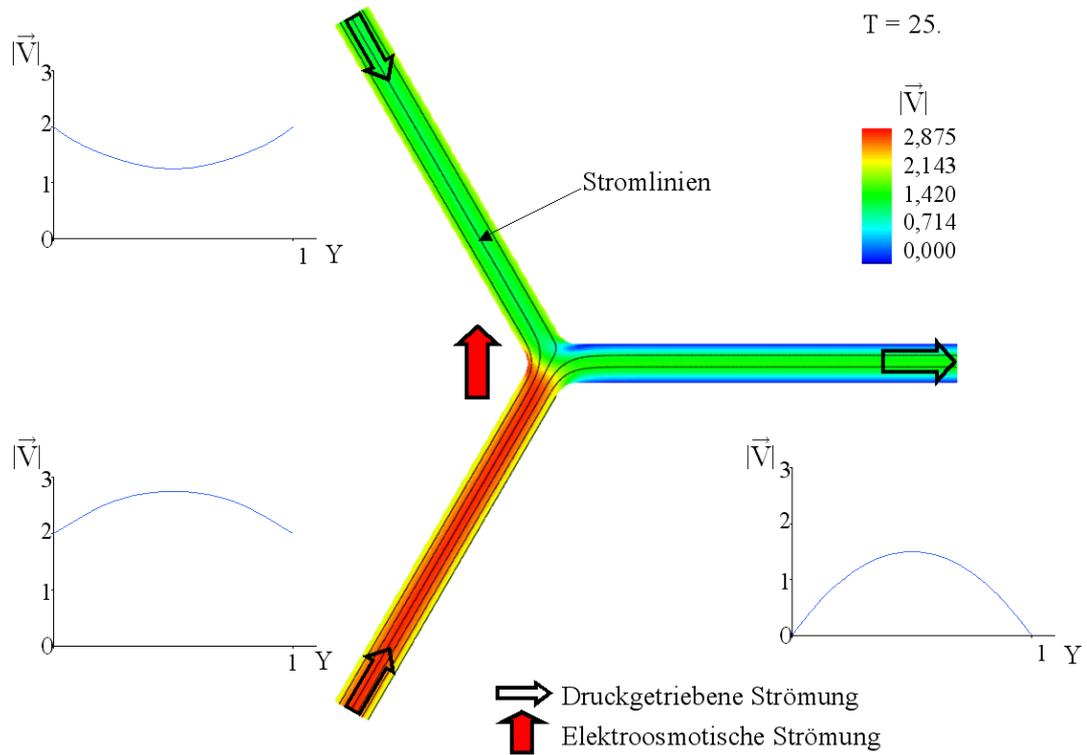


Abbildung 5.16: Betrag der Geschwindigkeit, Geschwindigkeitsprofile und Stromlinien zum Zeitpunkt $T = 25$.

Das Geschwindigkeitsprofil am Ausgang ergibt sich aus einer Überlagerung der beiden druckgetriebenen Anteile. Da im Ausgangskanal kein elektrisches Feld vorhanden ist (vgl. Abbildung 5.15), liegt im Ausgang das Geschwindigkeitsprofil einer Poiseuille-Strömung vor. Für die T - und ε -förmigen Mischergeometrien ergeben sich ähnliche Verhältnisse. Der Betrag der Geschwindigkeitsverteilungen und die Stromlinien zum Zeitpunkt $T = 25$ sind in Abbildung 5.17 dargestellt. Auf eine Darstellung der Geschwindigkeitsprofile an den Eingängen und am Ausgang wird verzichtet, da diese genau denen in Abbildung 5.16 entsprechen. Die Unterschiede sind dabei auf das Kreuzungsgebiet begrenzt. Auffällig sind die unterschiedlichen Maximalgeschwindigkeiten, die bei den drei Mischergeometrien an den Abrundungen auftreten. Die Beträge der Geschwindigkeit steigen dabei mit dem Winkel, über welchem das elektrische Feld angelegt ist, womit gilt $|\widehat{\vec{V}}_{\underline{Y}}| < |\widehat{\vec{V}}_{\underline{T}}| < |\widehat{\vec{V}}_{\underline{\varepsilon}}|$.

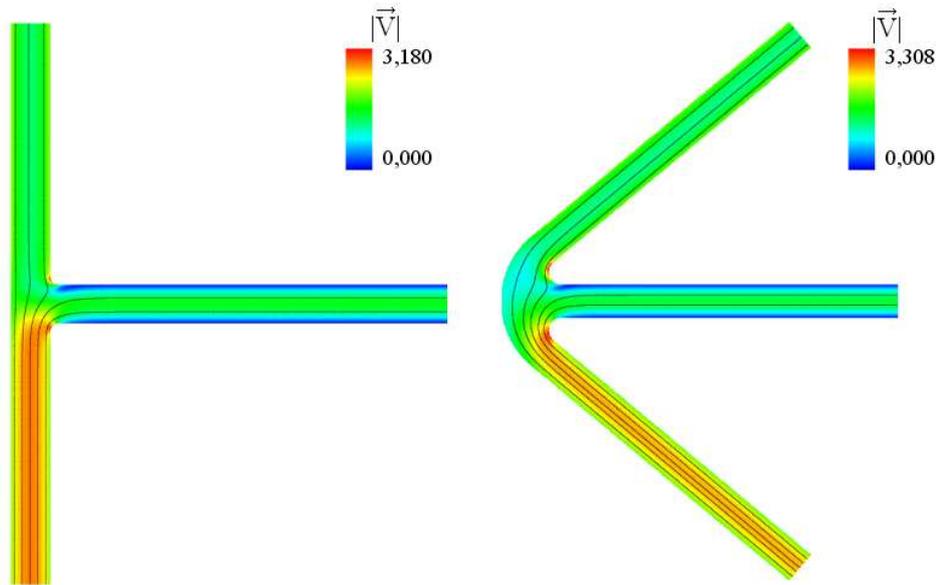


Abbildung 5.17: Betrag der Geschwindigkeit und Stromlinien des T- und ε -förmigen Mischers zum Zeitpunkt $T = 25$.

5.4.4 Die Konzentrationsverteilungen

In Kapitel 5.4.3 wird gezeigt, dass bei den Geschwindigkeiten nur im Kreuzungsgebiet wesentliche Unterschiede auftreten. Es stellt sich somit die Frage, ob diese lokal begrenzten Unterschiede ausreichen, die Konzentrationsverteilung maßgeblich zu beeinflussen. Dazu sind in Abbildung 5.18 im Ausgangskanal die Konzentrationsverteilungen und die Isokonzentrationslinien $C = 0,5$ der drei untersuchten Mischergeometrien dargestellt. Zum abgebildeten Zeitpunkt $T = 25$ ist der Anfang der Isokonzentrationslinien maximal in Richtung des oberen Eingangskanals ausgelenkt. Die Skala der Konzentration ist dabei aus optischen Gründen wieder auf einen Bereich von $0,4 < C < 0,6$ eingeschränkt. Zu sehen ist bei allen drei Mischern der gewünschte sinusförmige Verlauf der Isokonzentrationslinien. Die Vermischung der beiden Flüssigkeiten ist am Ausgang quasi vollendet. Die Abweichung vom Wert einer optimalen Vermischung $C = 0,5$ beträgt dort weniger als 1%, was primär durch den hohen Wert der Diffusionskonstante D zustande kommt.

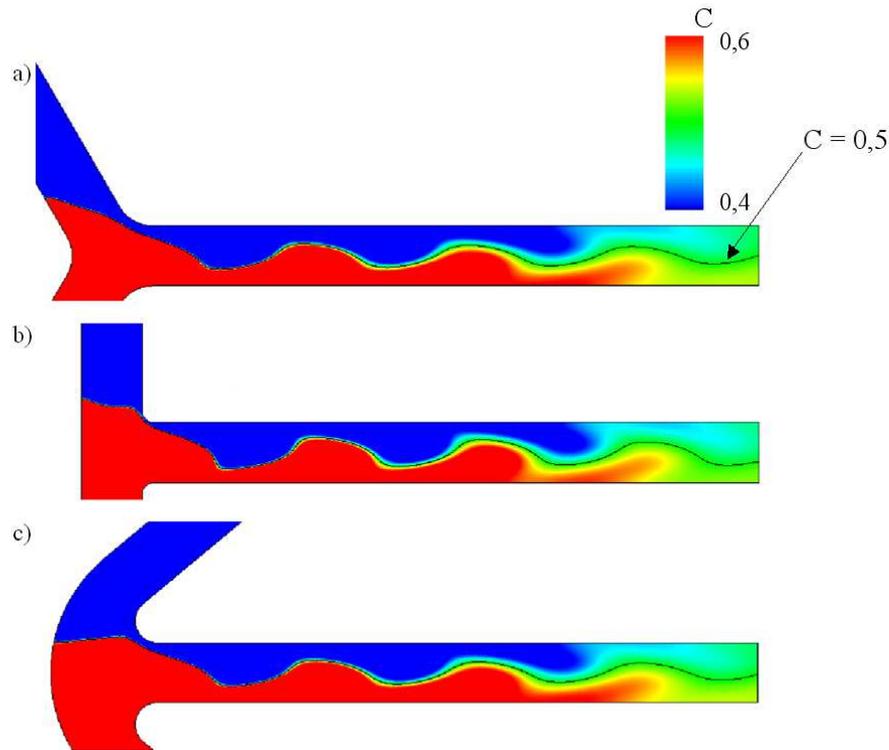


Abbildung 5.18: Konzentrationsverteilungen und Isokonzentrationslinien im Ausgangskanal zum Zeitpunkt $T = 25$ der a) Y-förmigen, b) T-förmigen und c) ε -förmigen Mischergeometrie.

Da kein erkennbarer Unterschied zwischen den Konzentrationsverteilungen und dem Verlauf der Isokonzentrationslinien der einzelnen Mischer besteht, sind in Abbildung 5.19 die Verläufe der Isokonzentrationslinien $C = 0,5$ übereinander gelegt. Abgesehen von den geometriebedingten Unterschieden im Kreuzungsgebiet, sind die Verläufe der Isokonzentrationslinien sehr ähnlich. Dabei entspricht der Verlauf der Isokonzentrationslinie des ε -förmigen Mischers im Ausgangskanal der des Y-förmigen Mischers. Die Isokonzentrationslinie des T-förmigen Mischers weicht im Ausgangskanal geringfügig von den anderen ab. Sie wird weiter aus der Mittelachse ausgelenkt, da die Isokonzentrationslinie um die Abrundung gestreckt wird. In Abbildung 5.19 werden für den T-förmigen Mischer noch zwei weitere Isokonzentrationslinien für die Werte $C = 0,49$ und $C = 0,51$ gezeigt. Im vorderen Bereich des Ausgangskanals weisen alle Isokonzentrationslinien den mehr oder weniger gleichen Verlauf auf. Im hinteren Bereich weichen, aufgrund der fortschreitenden Diffusion, die Isokonzentrationslinien $C = 0,49$ und $C = 0,51$ erheblich von den Isokonzentrationslinien $C = 0,5$ ab. Als Bewertungskriterium für die Vermischung werden die Isokonzentrationslinien in einzelne Segmente entsprechend einer halben Wellenlänge unterteilt. Zum Vergleich dient die

Isokonzentrationslinie $C = 0,5$, die sich bei einer rein druckgetriebenen Strömung ergibt. Diese entspricht der Mittelachse des Mischers. Dabei ergeben sich für den Y- und T-förmigen Mischer im Bereich der Kreuzung die höchsten Zuwächse, wenn die zeitabhängige Isokonzentrationslinie die weiteste Auslenkung von der Mittellinie aufweist. Im Ausgangskanal sind die Zuwächse des Y- und ε -förmigen Mischers in etwa gleich, die Zuwächse der Isokonzentrationslinie des T-förmigen Mischers liegen erkennbar darüber. Über dem weiteren Verlauf des Ausgangskanals sinken die Zuwächse dann aufgrund der fortschreitenden Diffusion ab.

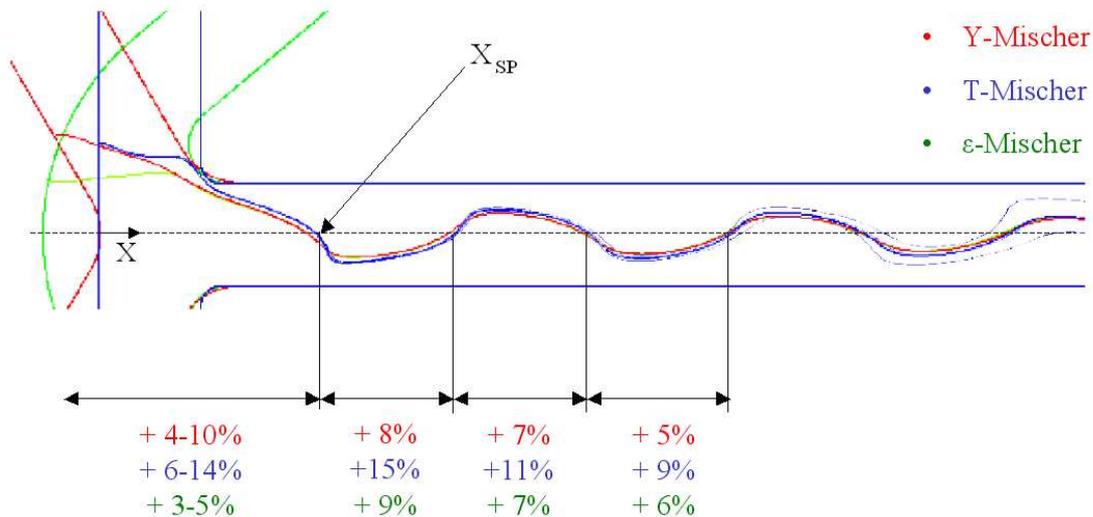


Abbildung 5.19: Isokonzentrationslinien $C = 0,5$ zum Zeitpunkt $T = 25$ der drei Mischergeometrien.

5.4.5 Bewertung der Vermischung

In diesem Abschnitt wird die Qualität der Vermischung zweier Stoffe bewertet. Dies ist wichtig, um die verschiedenen Mischer mitsamt ihren Eigenschaften und Betriebsparametern (wie Frequenz, Geschwindigkeiten, etc.) diesbezüglich vergleichen zu können. Es existieren dabei mehrere Möglichkeiten, die Qualität der Vermischung zu bewerten. Als Startpunkt für die Bewertung der Vermischung im Ausgangskanal wird die in Abbildung 5.19 markierte Stelle X_{SP} verwendet. An diesem Punkt schneiden sich zu dem Zeitpunkt $T = 25$ die Isokonzentrationslinien der drei Mischer mit der Mittelachse des Ausgangskanals.

Länge der Isokonzentrationslinie

Das einfachste und naheliegendste Bewertungskriterium ist die Länge der Isokonzentrationslinie $C = 0,5$, da über diese die Diffusion der Reagenzien stattfindet (bzw. über die Kontaktfläche, deren Verlauf von der Isokonzentrationslinie beschrieben wird). Dabei wird die Vermischung mit zunehmender Länge der Isokonzentrationslinie besser. In Abbildung 5.20 sind die Wegintegrale der Isokonzentrationslinien L in Abhängigkeit von der Koordinate X zum Zeitpunkt $T = 25$ abgebildet, gemäß:

$$L = \int_s d\vec{s}. \quad (5.3)$$

Die X -Koordinate zeigt dabei in Ausgangsrichtung. Die Isokonzentrationslinienlänge L wird ab X_{SP} dargestellt. Das stark zeitabhängige Verhalten im Kreuzungsgebiet wird somit nicht betrachtet. Der T-förmige Mischer schneidet dann am besten ab und die Kontaktflächenlängen des Y- und ε -förmigen Mixers sind kaum unterscheidbar. Unter Berücksichtigung des Kreuzungsbereiches ergibt sich dabei qualitativ das gleiche Verhalten.

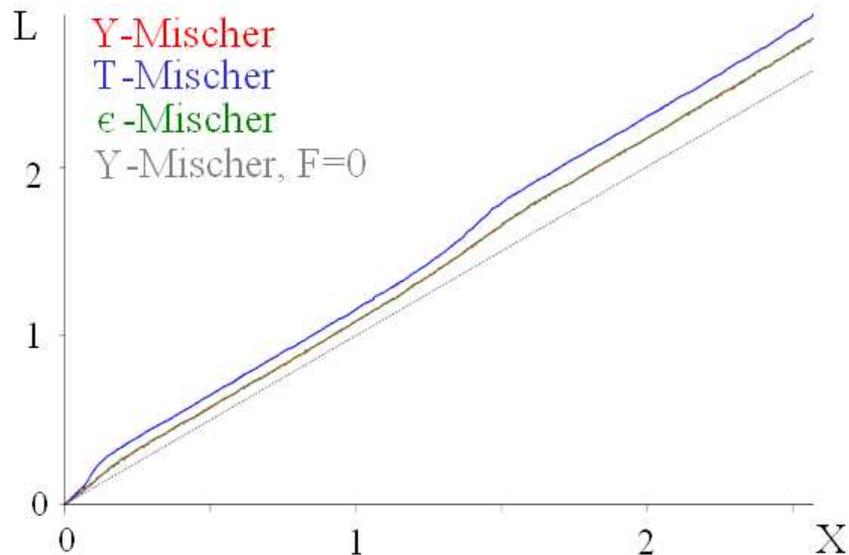


Abbildung 5.20: Länge L der Isokonzentrationslinie $C = 0,5$ zum Zeitpunkt $T = 25$, berechnet ab X_{SP} .

Der Konzentrationsgradient, der über der Isokonzentrationslinie anliegt, nimmt durch die sich einstellende Vermischung ab. Dadurch ist der Zuwachs der Linienlänge L mit fortschreitender Entfernung zum Kreuzungsgebiet immer weniger aussagekräftig. Dieser Effekt wird in der Bewertungsmethode durch die Isokonzentrationslinienlänge L nicht berücksichtigt. Es werden dabei auch nicht die unterschiedlichen Geschwindigkeiten über dem Kanalquerschnitt berücksichtigt. Damit wird also nicht unterschieden, ob die gut vermischten Bereiche

nahe der Kanalwand liegen (und kaum gefördert werden), oder in der Kanalmitte (wo die Förderung am schnellsten wäre).

Gewichtete Länge der Isokonzentrationslinie

Um das Verhalten der Triebkraft (des Konzentrationsgradienten) einer diffusiven Vermischung bei einer Bewertung zu berücksichtigen, wird im Folgenden eine Gewichtung der Isokonzentrationslinie mit dem Betrag des Konzentrationsgradienten eingeführt. Da der Gradient stets senkrecht auf der Isokonzentrationslinie $C = 0,5$ steht, kann für die gewichtete Isokonzentrationslinienlänge L^* der Zusammenhang

$$L^* = \int_s |\nabla C(s)| d\vec{s} \quad (5.4)$$

gefunden werden. Dabei ist s der Parameter des Parameterintegrals. Die Berechnung sollte hierbei aber nicht erst ab der Position X_{SP} erfolgen, da gerade im Kreuzungsbereich die höchsten Gradienten vorhanden sind. Daher wird das Wegintegral ab den jeweiligen Anfängen der Isokonzentrationslinien $C = 0,5$ gebildet. Um den dadurch stark zeitabhängigen Charakter von L^* zu dämpfen, wird eine zeitliche Mittelung über eine halbe Periode des oszillierenden Feldes durchgeführt. Dazu dienen die Ergebnisse von fünf gewichteten Weglängen L^* , die in diesem Intervall zeitlich äquidistant verteilt sind. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.21 für den Y-, T- und ε -förmigen Mischer über der Länge des Ausgangskanals dargestellt. Der Zuwachs an L^* kommt nach etwa 5-7 Kanaldurchmessern zum Erliegen und die Kurven der gewichteten Linienlängen streben asymptotisch einen Grenzwert an. Da an diesen Stellen aber noch keine vollständige Vermischung vorliegt, bedeutet dies, dass ab etwa $5-7d_0$ die nicht gewichtete Isokonzentrationslinienlänge L kein Maß mehr für die Qualität der Vermischung sein kann. Die Vermischung hat sich dann also vom Verlauf der Länge L abgekoppelt. Die gewichtete Isokonzentrationslinienlänge L^* des T-förmigen Mischers erreicht dabei den asymptotischen Endwert am schnellsten.

Natürlich muss berücksichtigt werden, dass dieses Verhalten nur für den hier untersuchten Fall mit einer hohen Diffusionskonstante D gilt. Wäre diese viel kleiner, würde auch über einer längeren Wegstrecke ein hoher Konzentrationsgradient über der Isokonzentrationslinie anliegen. Damit würde der asymptotische Charakter der gewichteten Weglänge erst bei größeren Abständen vom Beginn der Isokonzentrationslinienlänge der beiden Flüssigkeiten bemerkbar werden. In diesem Fall würde die nicht gewichtete Länge L über einem größeren Gebiet ein Maß für die Qualität der Vermischung sein.

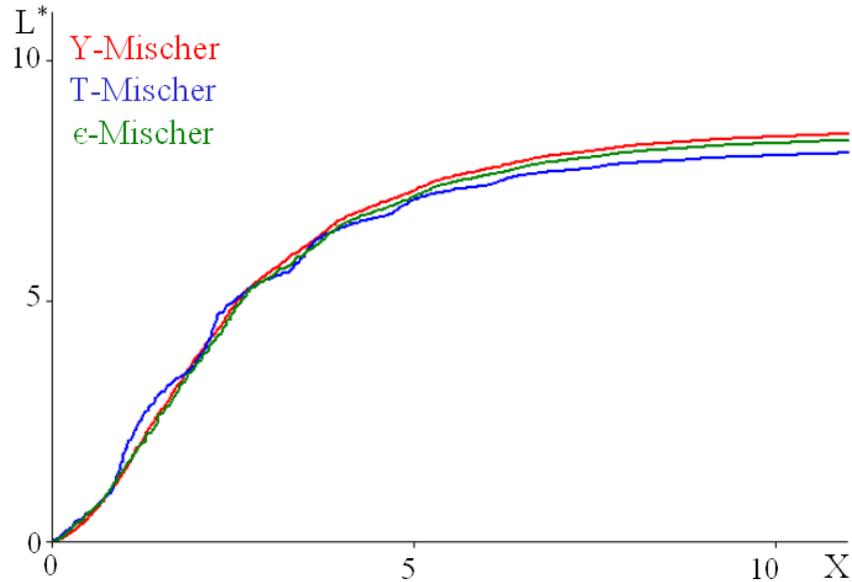


Abbildung 5.21: Gewichtete Isokonzentrationslinienlänge L^* der drei Mischergeometrien.

Mischgüte

Um auch den Einfluss unterschiedlicher Geschwindigkeiten über der Kanalweite d_0 zu berücksichtigen, bietet sich das Kriterium zur Mischgüte (2.32) von (Glasgow et al. 2004) an. Dazu wird die Auslenkung der Isokonzentrationslinie aus der Mittelachse des Ausgangskanals in acht äquidistante Querschnitte unterteilt und für jeden Querschnitt die lokale Mischgüte Γ berechnet. Abbildung 5.22 zeigt schematisch diese Unterteilung.

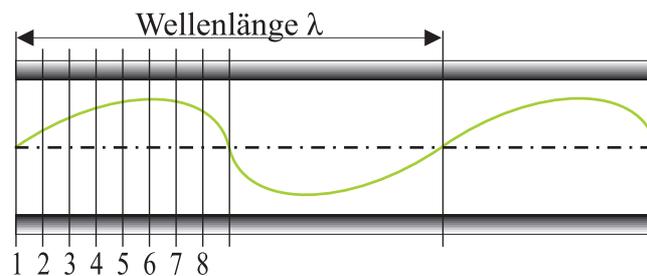


Abbildung 5.22: Isokonzentrationslinie (grün) und Bewertungspositionen in einem schematischen Kanal zur Ermittlung der Mischgüte Γ .

In Abbildung 5.23 sind die Verläufe der Mischgüten Γ ab der Position X_{SP} über den Ausgangskanalen zum Zeitpunkt $T = 25$ dargestellt. Die graue Linie entspricht hier wieder dem Fall, dass die Flüssigkeiten nur durch die druckgetriebene Strömung bewegt werden. Die Kurven der Mischgüten bei elektroosmotischer Sekundärströmung (blaue, grüne und

rote Linien) oszillieren um die Mischgüte der rein druckgetriebenen Strömung. Die Amplitude der Über- und Unterschwingungen nimmt mit fortschreitendem Abstand zu X_{SP} ab. Aufgrund der Lage der Extrema ist ersichtlich, dass der Mittelwert der Mischgüten mit Queroszillation geringfügig über der grauen Linie liegt. Deshalb führt die Queroszillation bei den verwendeten Parametern im Mittel zu einer höheren Mischgüte. Auffällig ist wieder, dass die Linien des Y- und ε -förmigen Mischers sehr dicht beieinander liegen.

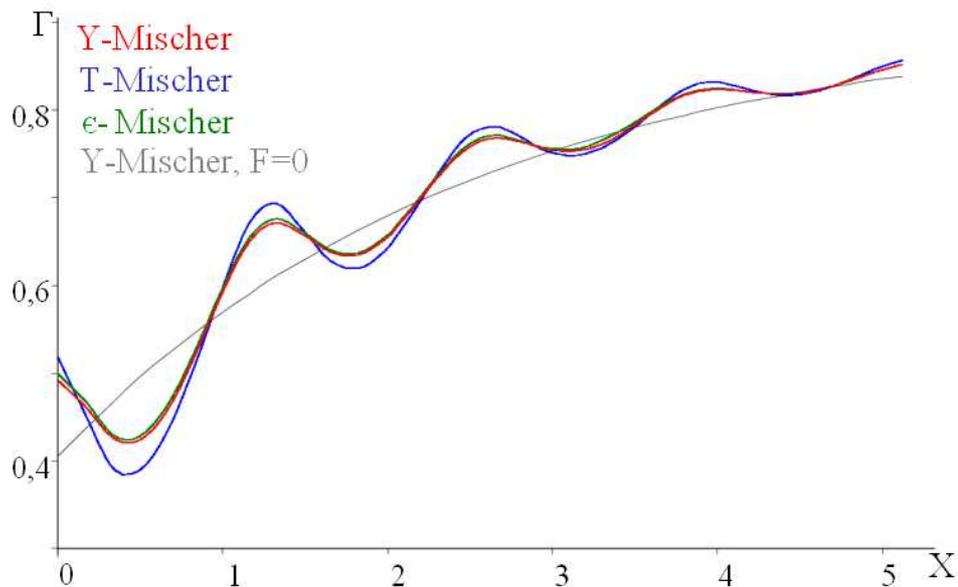


Abbildung 5.23: Mischgüte Γ der untersuchten Mischer im Abstand von der Position X_{SP} zum Zeitpunkt $T = 25$.

Die Linie der Mischgüte des T-förmigen Mischers weist hingegen größere Über- und Unterschwingungen auf. Durch die Lage der Extrema ist ersichtlich, dass die Verwendung eines T-förmigen Mischers im Mittel die höchste Mischgüte liefert. Die positiven und negativen Abweichungen von der Mischgüte des rein druckgetriebenen Y-förmigen Mikromischers können anhand Abbildung 5.24 erklärt werden. Dort sind die Konzentrationsprofile über der Kanalweite für den Y-, T- und ε -förmigen Mischer aufgetragen. Weiterhin ist das Konzentrationsprofil des Y-förmigen Mischers ohne queroszillierende Sekundärströmung abgebildet (graue Linie). Die Positionsangaben beziehen sich dabei auf Abbildung 5.22. Das Konzentrationsprofil an Position 1 in Abbildung 5.24 entspricht in Abbildung 5.23 einer maximalen Abweichung der Mischgüte nach oben, weil hier die Isokonzentrationslinien $C = 0,5$ die Mittelachse des Ausgangskanals schneiden und die Konzentrationen in der nahen Umgebung dazu deutlich näher am optimalen Wert $C = 0,5$ liegen, als bei der grau gepunkteten Vergleichslinie. An den Stellen, an denen die Kontaktfläche weit ausgelenkt ist (Position 3 bis

5 in Abbildung 5.24), werden die Regionen mit der besten Vermischung aufgrund des parabolischen Geschwindigkeitsprofils am langsamsten gefördert. Dieser Effekt wirkt der für die Vermischung positiven Zunahme der Isokonzentrationslinienlänge entgegen, was der Grund für die Unterschwingungen der Mischgüte Γ in Abbildung 5.23 ist. Die Über- und Unterschwingungen der Mischgüte Γ bedeuten auch, dass die Vermischung in Ausgangsrichtung nicht homogen ist.

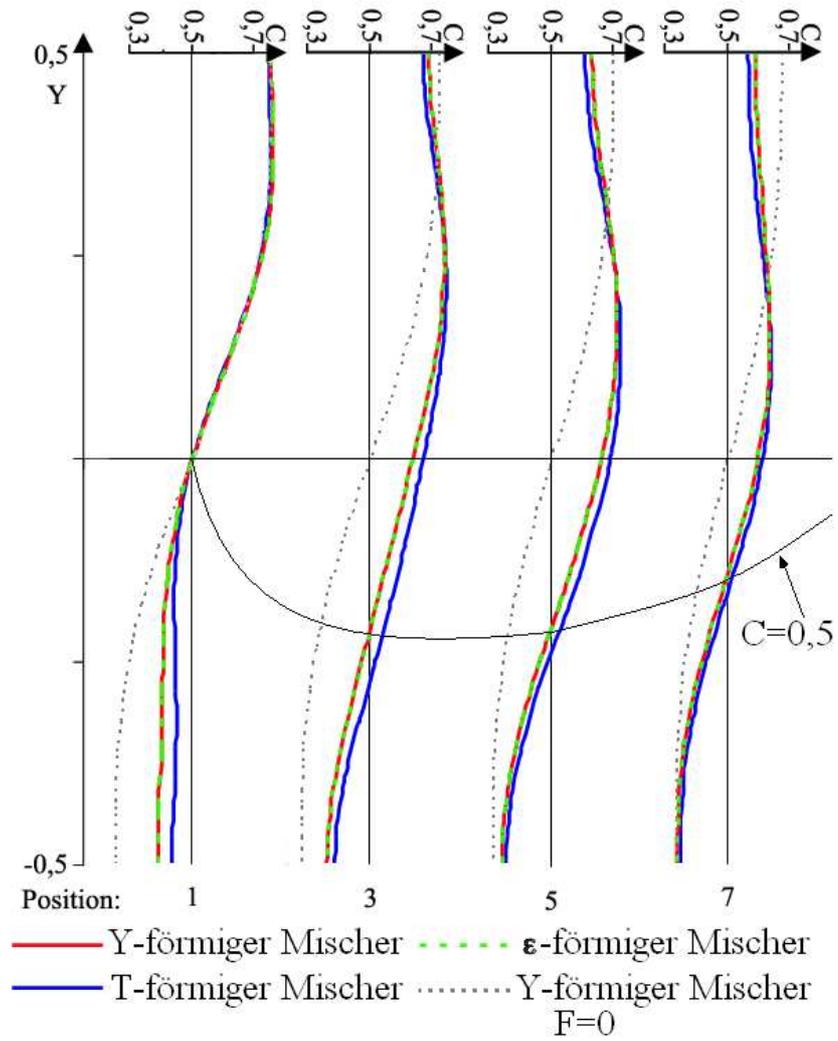


Abbildung 5.24: Konzentration C über der Kanalweite für den Y-, T- und ε -förmigen Mischer zum Zeitpunkt $T = 25$.

5.5 Der Einfluss des Geschwindigkeitsprofils

In dem vorherigen Kapitel ist ein Einfluss des Geschwindigkeitsprofils auf die Mischgüte festgestellt worden. Dieser Einfluss soll nun für verschiedene Geschwindigkeitsprofile untersucht werden. Dazu betrachten wir zunächst einen Fall ohne oszillierende Sekundärströmung. In Abbildung 5.25 ist links eine für diesen Fall typische Konzentrationsverteilung über dem Kanalquerschnitt dargestellt. An den Kanalwänden ist die Durchmischung schlecht (hohe bzw. niedrige Konzentration), während sie in der Mittelachse des Ausgangskanals optimal ist ($C = 0,5$). Abbildung 5.25 a) zeigt ein typisches Geschwindigkeitsprofil, das sich bei einem rein elektroosmotischen Antrieb einstellt. Durch das pfropfenförmige Geschwindigkeitsprofil werden alle Bereiche gleichmäßig gefördert. Eine Verbesserung stellt sicherlich eine druckgetriebene Strömung dar, dessen Geschwindigkeitsprofil in Abbildung 5.25 b) dargestellt ist. Dabei werden die schlecht durchmischten Bereiche in Nähe der Kanalwand kaum und die gut durchmischten Bereiche verstärkt gefördert. Eine weitere Verbesserung kann durch eine Kombination von elektroosmotischer und druckgetriebener Strömung erreicht werden, dessen Profil in Abbildung 5.25 c) zu sehen ist. Dabei sorgt die druckgetriebene Strömung für die Förderung in Ausgangsrichtung, der aber eine entgegengerichtete elektroosmotische Strömung überlagert ist. Mit dieser Konfiguration werden die schlecht durchmischten Bereiche in Nähe der Wand zurückgefördert, die mäßig durchmischten zwischen Wand und Kanalmitte werden dabei langsamer gefördert. Dies erhöht lokal die Verweilzeit, was sich positiv auf die Vermischung auswirkt. Die gut vermischten Bereiche in der Kanalmitte werden jedoch verstärkt gefördert.

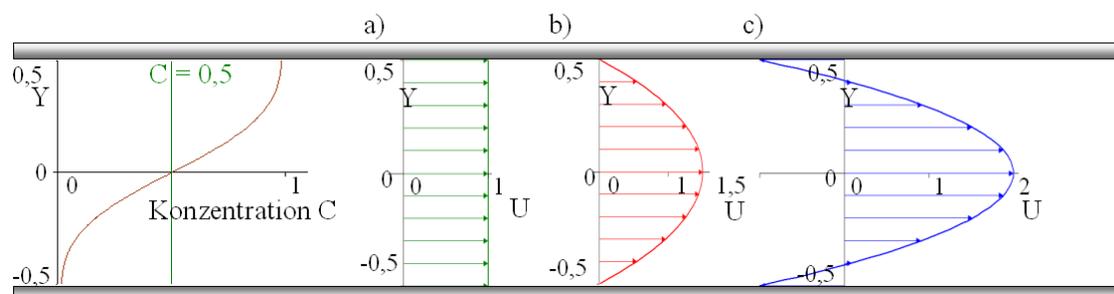


Abbildung 5.25: Typische Konzentrationsverteilung und Geschwindigkeitsprofile bei a) elektroosmotischer, b) druckgetriebener und c) bei einer Kombination aus elektroosmotischer und druckgetriebener Strömung.

Es werden Simulationen durchgeführt, mit denen der Einfluss der Geschwindigkeitsprofile auf die Mischgüte untersucht werden soll. Dazu wird, um die Vergleichbarkeit zu gewährleisten, der Volumenstrom in allen Fällen konstant gehalten. Dabei wird sich auf die Geometrie des Y-förmigen Mischers beschränkt und es wird weiterhin auf die Erzeugung einer oszillierenden Sekundärströmung verzichtet. In Abbildung 5.26 sind die Mischgüten Γ für die drei unterschiedlichen Geschwindigkeitsprofile in Abhängigkeit des Ortes in Ausgangsrichtung dargestellt. Das Bewertungsgebiet beginnt an X_{SP} und endet nach der Strecke einer Wellenlänge nach Kapitel 5.4.4. Dieses Bewertungsgebiet ist wegen der hohen Diffusionskonstante D so klein gewählt, da sehr schnell eine hohe Mischgüte erreicht wird. Innerhalb dieser Strecke liegt die Mischgüte für das druckgetriebene Geschwindigkeitsprofil im Mittel um ca. 20% über der Mischgüte, die sich bei einem elektroosmotischen Geschwindigkeitsprofil ergibt. Das kombinierte Geschwindigkeitsprofil führt zu einer Steigerung um ca. 40% bezogen auf das elektroosmotische Geschwindigkeitsprofil. Zum Vergleich wird auch die Mischgüte bei oszillierender elektroosmotischer Sekundärströmung und druckgetriebener Hauptströmung (entsprechend 5.23) gestrichelt in der Farbe Rot aufgetragen. Bei einem quantitativen Vergleich muss beachtet werden, dass diese Mischgüte zeitabhängig ist.

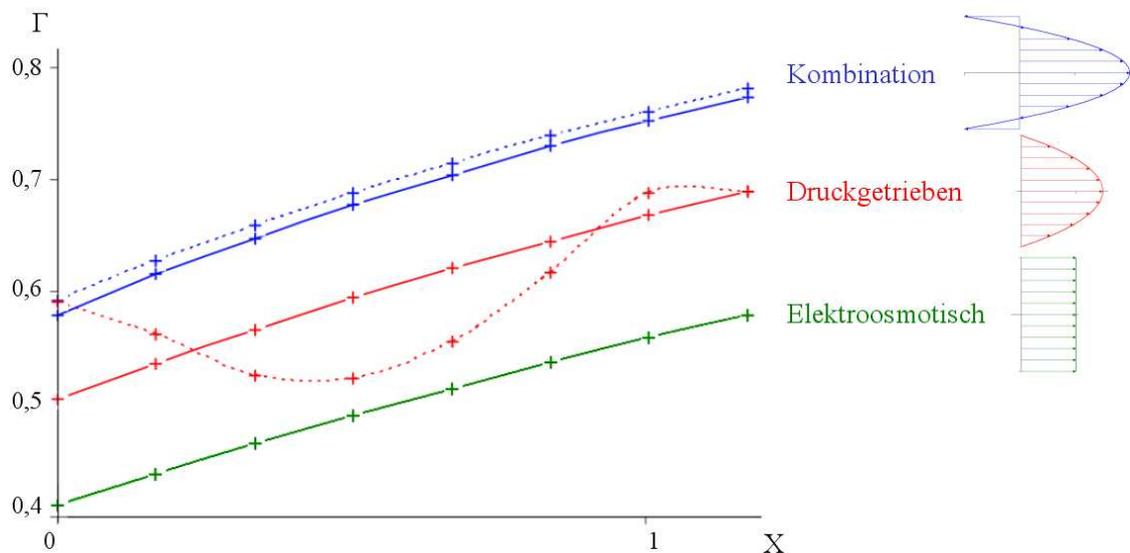


Abbildung 5.26: Mischgüte Γ der untersuchten Mischer im Abstand von der Vergleichsposition.

Die Mischgüten, die durch die Kombination von druckgetriebener Strömung und Elektroosmose erzielt werden, liegen deutlich über den Mischgüten, die sich bei den Betriebsparametern einer queroszillierenden Strömung einstellen. Bei der Bewertung der Kombination ergibt sich die Problematik, dass Teile des Volumenstroms entgegen der Förderrich-

tung transportiert werden. Dies hat den Vorteil, dass schlecht durchmischte Bereiche nicht zum Ausgang des Mischers gelangen. Die Berechnung der Mischgüte mit Gleichung (2.32) berücksichtigt diesen Effekt nicht. Daher enthält Abbildung 5.26 zusätzlich eine korrigierte Mischgüte (durchgezogene blaue Linie). Dabei wird die Geschwindigkeit der zurückgeförderten Bereiche auf den Wert null gesetzt.

Die Mischgüte liefert nur eine integrale Aussage über den Zustand der Vermischung. Es kann somit nicht beurteilt werden, ob die Kombination von druckgetriebener und elektroosmotischer Strömung auch die lokale Vermischung verbessert. Daher sind in Abbildung 5.27 die Konzentrationsprofile entsprechend der Lage in Abbildung 5.22 aufgezeigt. In der Nähe der Wand erkennt man hier den positiven Effekt einer längeren Verweilzeit. So ist dort die Konzentration für das druckgetriebene Geschwindigkeitsprofil (rot) näher am optimalen Wert $C = 0,5$ als die Konzentration bei der elektroosmotischen Strömung (grün). Bei dem kombinierten Geschwindigkeitsprofil (blau) ist in wandnähe der Abstand zum optimalen Wert $C = 0,5$ noch kleiner. Damit ist gezeigt, dass die längere Verweilzeit einen merklichen positiven Effekt auf die Konzentrationsverteilung über dem Querschnitt hat. Die schwarzen gestrichelten Linien in Abbildung 5.27 markieren die Stellen, an denen die Geschwindigkeit null ist. In dem Bereich zwischen den beiden Linien wird die Flüssigkeit in Richtung Ausgang gefördert. In den beiden Bereichen zwischen Kanalwand und gestrichelter Linie wird die Flüssigkeit gegen die Hauptströmungsrichtung gefördert.

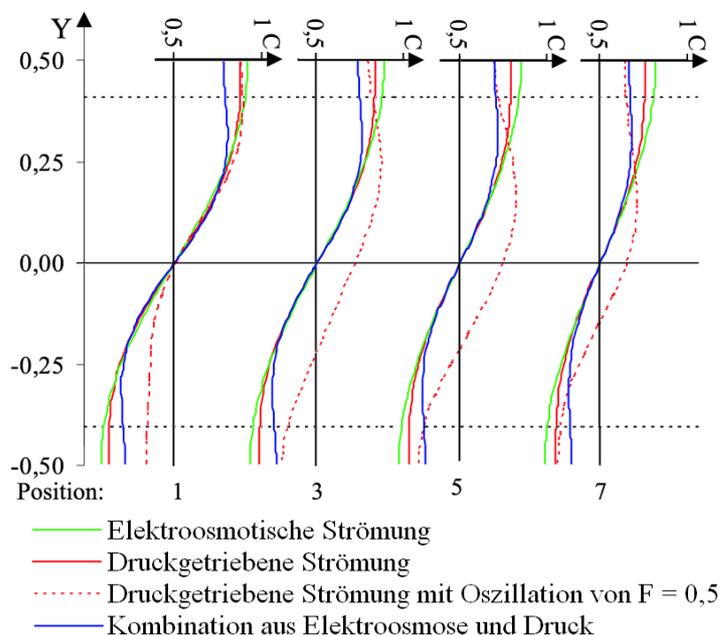


Abbildung 5.27: Konzentrationsverteilung über der Kanalweite bei verschiedenen Geschwindigkeitsprofilen im Ausgangskanal.

Bei einer Verwendung des kombinierten Geschwindigkeitsprofils ergibt sich aber das Problem, dass Flüssigkeit aus dem Ausgangsreservoir in die Eingangsreservoire zurückgefördert werden kann und diese eventuell verunreinigt. Diese Problematik kann aber auf verschiedene Weise vermieden werden.

1. In Sonderfällen kann zu Beginn des Förderprozesses die elektroosmotische Strömung in die gleiche Richtung angelegt werden, in der die druckgetriebene Strömung vorhanden ist. Dadurch kann ein Pfropfen erzeugt werden, aus dem sich, nach dem Umschalten der Elektroosmose in die Gegenrichtung, die Rückförderung speisen kann.

2. Die Kanalwände werden so beschichtet, dass sich keine EDL ausbildet. Somit wird die Rückförderung an beliebigen Stellen unterbrochen. In Abbildung 5.28 sind die Stromlinien für einen solchen Fall dargestellt. Anhand der Stromlinien erkennt man, dass in den Eingangskanälen keine Rückförderung stattfindet. Würde weiter stromabwärts im Ausgangskanal eine weitere Stelle so beschichtet werden, würden die Stromlinien in wandnähe walzenförmig verlaufen und die schlecht durchmischten Bereiche besäßen in wandnähe eine noch höhere Verweilzeit.

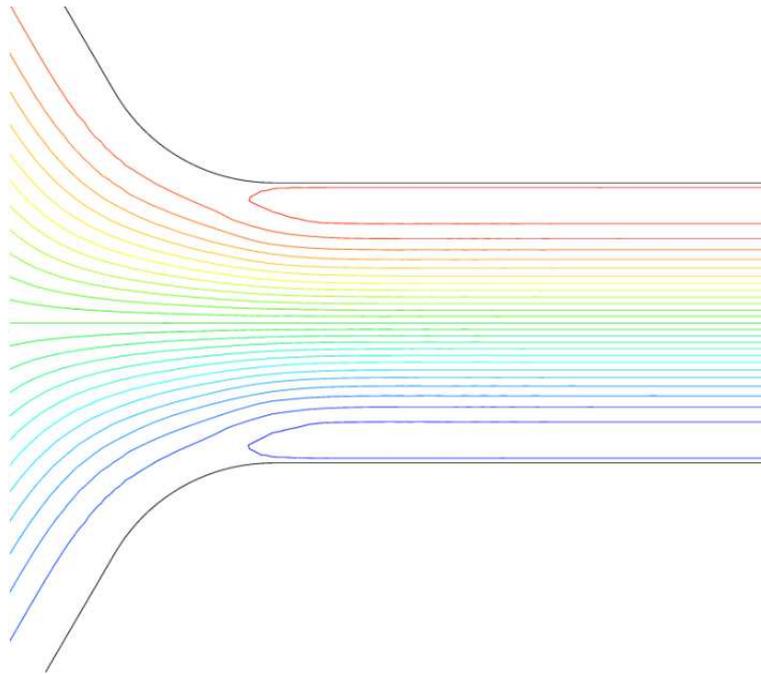


Abbildung 5.28: Verlauf der Stromlinien in einem Y-förmigen Mischer bei lokal beschichteten Eingangskanälen.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist die numerische Simulation elektrisch erregter Mikromischer und ein Vergleich der erzielbaren Vermischung. In einem ersten Schritt werden Simulationen zu einem real existierenden Mischer nach (Matsumoto et al. 2005) vorgenommen. In diesem Mischer ist einer druckgetriebenen Strömung ein oszillierendes elektrisches Feld zwischen den Eingängen und dem Ausgang überlagert. Das elektrische Feld kann mittels einer Laplace-Gleichung berechnet werden, das von der fluiddynamischen Situation entkoppelt ist. Der Einfluss der elektroosmotischen Kräfte in der elektrischen Doppelschicht wird über adäquate Übergangsbedingungen erfasst. Die numerischen Simulationen zu dem existierenden Mikromischer zeigen gute qualitative Übereinstimmungen. Jedoch zeigt es sich, dass bei der vorgesehenen Betriebsweise keine optimale Vermischung erzielt werden kann. Daher wird der Mischer in Bezug auf Betriebsweise und Betriebsparameter optimiert.

Um den Einfluss verschiedener Geometrien zu analysieren, wird ein Y-, ein T- und ein ε -förmiger Mischer mit einer überlagerten elektroosmotischen Strömung untersucht. Zusammenfassend kann der Schluss gezogen werden, dass im untersuchten Parameterbereich der Einfluss des Winkels zwischen den Eingangskanälen auf die sinusförmig aufgefaltete Kontaktfläche äußerst gering ist. Bei den untersuchten Parametern nimmt die Länge der Isokonzentrationslinien $C = 0,5$ (welche das Verhalten der Kontaktflächen wieder spiegeln) bei einem T-förmigen Mischer um 8–15% zu, wenn eine oszillierende elektroosmotische Sekundärströmung vorliegt. Bei Verwendung eines Y- und ε -förmigen Mixers beträgt der Zuwachs zwischen 3 und 9%. Der höhere Zuwachs beim T-förmigen Mischer ist deshalb vorhanden, weil die Isokonzentrationslinie über eine Kante der Mischergeometrie „gestreckt“ wird. Die Streckung wird dann stromabwärts transportiert und ist auch noch weit ab vom Kreuzungsbereich feststellbar. Mit zunehmendem Abstand vom Kreuzungsgebiet nehmen die Grenzflächenzuwächse durch Diffusion wieder ab. Weil die Vermischung stromabwärts immer weiter fortschreitet, nimmt zusätzlich die Mischungsneigung

der beiden Stoffe ab. Um diesen Effekt in den Bewertungskriterien zu berücksichtigen, wird die Isokonzentrationslinie mit dem Betrag des Konzentrationsgradienten gewichtet. Es wird festgestellt, dass die Länge der Isokonzentrationslinien $C = 0,5$ nur in dem Bereich der ersten fünf bis sieben Kanaldurchmesser eine Rolle für die weitere Vermischung spielt. Um auch den Einfluss unterschiedlicher Fördergeschwindigkeiten zu berücksichtigen, wird ein aus der Standardabweichung der Statistik abgeleitetes Kriterium zur Mischgüte von (Glasgow et al. 2004) übernommen. Dabei wird festgestellt, dass bei einer Auffaltung der Isokonzentrationslinie dem positiven Effekt der Vergrößerung der Länge auch negative Effekte gegenüberstehen. Erstens sind in einem kurzen Bereich hinter dem Kreuzungsgebiet große Schwankungen der Mischgüte in Kanallängsrichtung feststellbar. Die Qualität des Produktes eines Mischers sollte jedoch immer konstant sein. Zweitens führt die periodische Auslenkung der Isokonzentrationslinie aus der Mittelachse des Ausgangskanals dazu, dass die Bereiche guter Vermischung aus der Kanalmitte ausgelenkt werden. Weil im Ausgangskanal ein parabolisches Geschwindigkeitsprofil vorliegt, werden dann die gut vermischten Bereiche weniger gefördert. Verglichen mit dem Zusammenführen der zu mischenden Stoffe durch eine druckgetriebene Strömung ohne queroszillierende Sekundärströmung, ergibt sich daher durch die Kontaktflächenaufweitung bei den untersuchten Betriebsparametern im Mittel keine wesentlich höhere Mischgüte über dem Ausgangskanal. Um den Einfluss des Geschwindigkeitsprofils auf die Mischgüte zu untersuchen, werden die Simulationsergebnisse von stationären Strömungen mit unterschiedlichen Geschwindigkeitsprofilen einander gegenübergestellt. Es liegt hier somit keine queroszillierende Sekundärströmung vor. Das parabelförmige Geschwindigkeitsprofil einer druckgetriebenen Strömung führt gegenüber dem pfropfenförmigen Geschwindigkeitsprofil einer elektroosmotischen Strömung zu einer Steigerung der Mischgüte um ca. 22%. Dieser beträchtliche Zuwachs lässt sich innerhalb einer Strecke von ca. 1,5 Kanaldurchmessern vom Kreuzungsgebiet realisieren¹. Eine weitere Verbesserung lässt sich erzielen, wenn einer druckgetriebenen Strömung eine entgegengerichtete elektroosmotische Strömung überlagert wird. Dies bewirkt einerseits eine verstärkte Förderung der Bereiche nahe der Kanalmitte, die eine sehr gute Vermischung aufweisen. Andererseits werden die Bereiche mit schlechter Durchmischung nahe der Kanalwand zurückgefördert. Dies erhöht die Verweilzeit der mäßig vermischten Bereiche, so dass ihnen eine längere Zeit zur Diffusion bleibt. Im Vergleich zu einer rein elektroosmotischen Strömung lässt sich die durchschnittliche Mischgüte damit um ca. 40% steigern. Durch diese Kombination von druckgetriebener und elektroosmotischer Strömung erhöht sich die durchschnittliche Mischgüte auf der untersuchten Strecke sogar gegenüber dem Mischer mit oszillierender Querströmung um 17%. Somit ist gerade auf kurzen Mischstrecken eine Überlage-

¹Würden sich die Reagenzien schlechter als im untersuchten Fall vermischen, würde so ein hoher Zuwachs über einem größeren Bereich auftreten.

rung aus druckgetriebener Strömung und entgegengerichteter elektroosmotischer Strömung von großem Vorteil. Wird in einem Mischer eine queroszillierende Sekundärströmung mit dem neuartigen Geschwindigkeitsprofil kombiniert, sollten sowohl Amplitude als auch Wellenlänge der Isokonzentrationslinie klein sein, damit sich deren Auffaltung auf die Bereiche mit hoher Fördergeschwindigkeit konzentriert.

In nachfolgenden Arbeiten sollten die in dieser Arbeit vorgestellten Methoden auf dreidimensionale Simulationen angewendet werden. Die zweidimensionalen Simulationen dieser Arbeit geben zwar in guter Näherung die Verhältnisse in der mittleren Kanalebene eines Mixers wieder, dreidimensionale Strukturen können jedoch nicht wiedergegeben werden. Eine weitere Abschätzung der Mischgüte kann durch das Einbringen von Partikeln in die Strömung (particle tracking) vorgenommen werden. Dieses Verfahren ist dann unabhängig von der Diffusion der Stoffe, womit der Einfluss der Strömung auf die Vermischung beurteilt werden kann. Damit kann auch überprüft werden, ob sich die zu erzielenden Vermischungen bei den drei untersuchten Mischergeometrien signifikant unterscheiden, ohne dass die Diffusion eine solche Bewertung erschwert.

Kapitel 7

Anhang

In Kapitel 3.1 wurde die verwendete Diskretisierung des Zeitschritts und die Ordnung der Ansatzfunktionen in einem Element vorgestellt. Als Parameter zur Durchführung der Simulation verbleiben dann noch die Weite des Zeitschrittes und die räumliche Diskretisierung des Rechengebietes. Diese müssen so gewählt werden, dass die Ergebnisse der numerischen Simulation und die tatsächliche Lösung so gut wie möglich übereinstimmen. Die tatsächlichen Lösungen der Erhaltungsgleichungen in komplizierten Geometrien sind nicht bekannt. Um Anhaltspunkte für die Parameter zu erhalten, bei denen die numerischen Ergebnisse möglichst genau sind, werden zwei Testfälle konstruiert. Im Falle einer eindimensionalen Diffusionsgleichung und einer eindimensionalen Konvektions-Diffusions-Gleichung können für bestimmte Rand- und Anfangsbedingungen geschlossene analytische Lösungen gefunden werden. Obwohl diese Randbedingungen physikalisch nicht sinnvoll sind, eignen sie sich zur Abschätzung des numerischen Fehlers. Zu diesen Rand- und Anfangsbedingungen werden dann numerische Simulationen mit verschiedenen Parametern durchgeführt. Die Parameter, welche eine große Konvergenzgeschwindigkeit und eine gute Übereinstimmung mit der analytischen Lösung aufweisen, werden als Grundlage für die Parameter in den komplizierten Mischgeometrien verwendet. Die analytische Lösung der Differentialgleichungen werden in Kapitel (7.2 und 7.1) hergeleitet und die Abweichungen für bestimmte Elementgrößen und Zeitschrittweiten in Kapitel (7.3) dargestellt.

In Kapitel 7.4 werden für die Geometrie des Mischers im Kreuzungsgebiet die Lösungsergebnisse der Geschwindigkeit und der Stoffverteilung für verschiedene Diskretisierungen und Netzarten verglichen. Die Netze werden dabei sukzessive verfeinert, bis ein Unterschied der Geschwindigkeits- und Stoffverteilung von etwa 1% erzielt wird. Die optimale Zeitschrittweite wird ähnlich ermittelt. Auch sie wird sukzessive verringert, bis die Abweichungen der Lösungen zu einer kleineren Zeitschrittweite unter einem Prozent liegen. Die Lösungen der Geschwindigkeit sind dabei relativ unabhängig von Netzdiskretisierung und Zeitschrittweite.

7.1 Analytische Lösung des Stofftransportes mit Diffusion und Konvektion

Die eindimensionale Stofftransportgleichung unter Berücksichtigung von Diffusion und Konvektion lautet in entdimensionierter Form:

$$C_T(X, T) + UC_X(X, T) - \frac{1}{Pe}C_{XX}(X, T) = 0. \quad (7.1)$$

Dabei ist C die Stoffkonzentration, U eine konstante Geschwindigkeit und Pe die Peclet-Zahl. Gleichung (7.1) ist eine parabolische DGL, welche häufig mit einem Separationsansatz lösbar sind (Bronstein, Semendjajew, Musiol und Mühlig 2000), gemäß:

$$C(X, T) = \tau(T) \cdot \xi(X). \quad (7.2)$$

dabei stellen sowohl $\xi(X)$ als auch $\tau(T)$ separierte Teilfunktionen dar, die jeweils nur von der Variablen X bzw. T abhängig sind. Wird dieser Ansatz in Gleichung (7.1) eingesetzt, ergibt dies eine Differentialgleichung, bei der jeweils eine Seite nicht von der anderen abhängig ist und somit mit einem Konstantparameter ψ substituiert werden kann. Nach Lösung der separierten Differentialgleichungen muss für ψ ein Übergang gefunden werden, gemäß:

$$\frac{1}{\tau} \tau_T = \frac{1}{Pe} \frac{1}{\xi} \xi_{XX} - U \frac{1}{\xi} \xi_X = \psi. \quad (7.3)$$

Nun können beide Seiten getrennt in Abhängigkeit von dem Konstantparameter ψ mit einem Exponentialansatz $f((X, T)) = e^{\gamma(X, T)}$ gelöst werden. Dies führt auf zwei Teillösungen in Abhängigkeit von ψ . Die Teillösungen lauten dabei:

$$\begin{aligned} \xi_\psi(X) = & A_1 \exp \left[\left(\frac{PeU}{2} + \sqrt{\left(\frac{PeU}{2}\right)^2 + \psi Pe} \right) X \right] + \dots \\ & \dots + A_2 \exp \left[\left(\frac{PeU}{2} - \sqrt{\left(\frac{PeU}{2}\right)^2 + \psi Pe} \right) X \right], \end{aligned} \quad (7.4)$$

$$\tau_\psi(T) = A_3 \cdot \exp[\psi T]. \quad (7.5)$$

Dabei sind die A_i Integrationskonstanten. Die Randbedingungen werden so gewählt, dass die Lösung geschlossen dargestellt werden kann. Hierfür eignen sich z.B.:

$$C(X = 0, T) = \xi(X = 0) = 0, \quad (7.6)$$

$$C(X = 1, T) = \xi(X = 1) = 0. \quad (7.7)$$

Aus dem durchzuführenden Exponentenvergleich ergibt sich die zwangsläufige Bedingung für den Konstantparameter ψ :

$$\psi \stackrel{!}{=} -\frac{\pi^2 n^2}{Pe} - Pe\left(\frac{U}{2}\right)^2. \quad (7.8)$$

Mit (7.6) und (7.4) ergibt sich die Stoffverteilung in Abhängigkeit von der Koordinate X und der natürlichen Zahl n aus (7.8) eine Grundlösung, mit der über eine Reihenentwicklung jede Anfangsbedingung dargestellt werden kann:

$$C_n(X, T) = A_4 \cdot \sin[\pi n X] \exp \left[\left(-\frac{\pi^2 n^2}{Pe} - Pe\left(\frac{U}{2}\right)^2 \right) \cdot T + \frac{PeU}{2} X \right]. \quad (7.9)$$

Je nach Anfangsbedingung kann diese Reihe unbeschränkt sein, was bei dem erstrebten Vergleich zwischen analytischer und numerischer Lösung zu dem Problem führt, dass die analytische Lösung auch fehlerbehaftet ist. Um dieses Problem zu vermeiden wird eine Anfangsbedingung so gewählt, dass nur eine endliche Reihenentwicklung notwendig ist. Deshalb wird die Anfangsbedingung zu (7.9) mit $n = 1$ gewählt. Die Gesamtlösung ergibt sich damit zu:

$$C(X, T) = 2 \sin[\pi X] \exp \left[\left(-\frac{\pi^2}{Pe} - Pe\left(\frac{U}{2}\right)^2 \right) \cdot T + \frac{PeU}{2} X \right]. \quad (7.10)$$

7.2 Analytische Lösung des Stofftransportes mit Diffusion

Unter Berücksichtigung der Diffusion entspricht die eindimensionale Stofftransportgleichung der sogenannten Wärmeleitgleichung und sie lautet in entdimensionierter Form:

$$C_T(X, T) = \frac{1}{Pe} C_{XX}(X, T). \quad (7.11)$$

Auch sie ist eine partielle DGL parabolischen Typs und kann über den Separationsansatz (7.2) gelöst werden. Die Herleitung einer analytischen Lösung erfolgt analog zu Kapitel 7.1. Die Rand- und Anfangsbedingungen werden so gewählt, dass eine geschlossene Lösung berechnet werden kann. So werden an beiden Rändern feste Konzentrationen vorgegeben und die Anfangsbedingung günstig gewählt zu:

$$C(X = 0, T) = C(X = 1, T) = 0, \quad (7.12)$$

$$C(X, T = 0) = 2 \sin(\pi X). \quad (7.13)$$

Damit ergibt sich die Gesamtlösung zu:

$$C(X, T) = 2 \cdot \sin[\pi X] \exp \left[-\frac{\pi^2}{Pe} T \right]. \quad (7.14)$$

7.3 Vergleich zwischen analytischer und numerischer Lösung

In diesem Abschnitt wird ein Vergleich zwischen den Ergebnissen der analytischen Lösung und den Ergebnissen der entsprechenden numerischen Simulation gezogen. Die jeweiligen Anfangsbedingungen werden in der numerischen Simulation über eine Taylorreihe angegeben. Dabei wird die höchstmögliche Ordnung gewählt, um Abweichungen zwischen analytischer und entwickelter Anfangsbedingung zu minimieren. Die maximale Abweichung zwischen approximierter und analytischer Anfangsbedingung liegt bei unter 0.01%. Das Simulationsgebiet ist in Abbildung 7.1 dargestellt. Der Stofftransport erfolgt dabei in Richtung der X -Koordinate. Die Höhe des Rechengebietes (Y -Koordinatenrichtung) entspricht der zehnfachen Länge in X -Richtung.

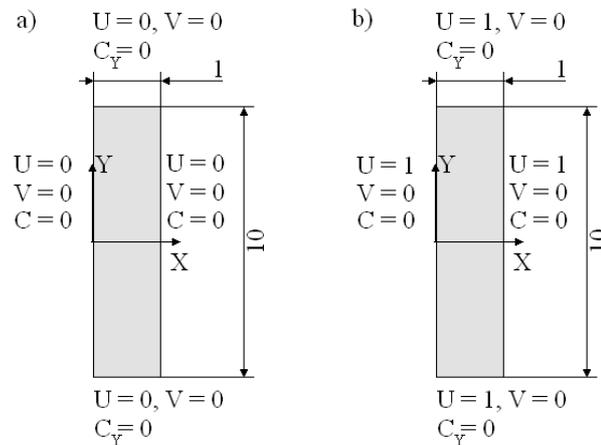
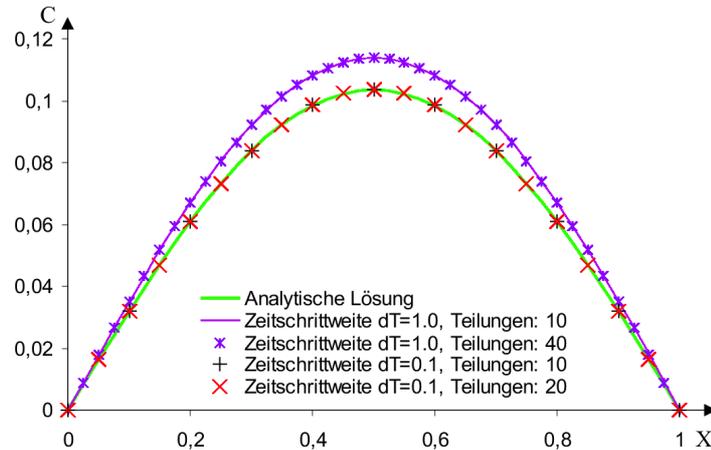


Abbildung 7.1: Rechengebiet für die *Fidap*-Simulation für die Fälle a) Diffusion und b) Konvektion und Diffusion.

7.3.1 Diffusion

Die Geschwindigkeiten sind an den Begrenzungen auf den Wert null gesetzt und über die obere und untere Begrenzung des Rechengebietes findet kein Stofftransport statt (vgl. Abbildung 7.1 links). Diese Ergebnisse können mit der analytischen Lösung gemäß (7.14) verglichen werden. Der Vergleich soll zum Zeitpunkt $T = 10$ erfolgen. Die Stoffparameter werden analog zu denen im Mischer verwendet. Es ergibt sich für die Peclet-Zahl der Wert $Pe = 33\frac{1}{3}$. In Abbildung 7.2 ist die ermittelte Konzentration über der eindimensionalen Länge aufgetragen. Die grüne Linie entspricht dabei der analytischen Lösung. Es werden zwei verschiedene Zeitschrittweiten, $dT = 1,0$ und $dT = 0,1$, sowie drei verschiedene Elementbreiten (angegeben in Teilungen je Einheitslänge) untersucht. Die Werte bei der Zeitschrittweite von $dT = 1,0$ weichen dabei deutlich von der analytischen Lösung ab und zwar

unabhängig von der Elementbreite. Die höchste Abweichung gegenüber der analytischen Lösung beträgt dabei etwa 10%. Die Ergebnisse der Konzentration für die kleinere Zeitschrittweite von $dT = 0,1$ decken sich hingegen mit der analytischen Lösung, die höchste Abweichung beträgt dabei weniger als 0,1%. bei einer Zeitschrittweite von $dT = 1$ hingegen $\Delta C \approx 10\%$.



Abbildungung 7.2: Vergleich zwischen den Konzentrationen aus analytischer und numerischer Lösung bei Diffusion zum Zeitpunkt $T = 10$.

7.3.2 Diffusion und Konvektion

Es tritt nun Diffusion und Konvektion auf. Deshalb sind als Randbedingung hier alle Geschwindigkeitskomponenten in X-Richtung auf den Wert $U = 1$ gesetzt (vgl. Abbildung 7.1, rechts). Da durch die Konvektion der Stoff schnell aus dem Simulationsgebiet herausgetragen wird, nimmt die Stoffkonzentration C schnell ab. In Abbildung 7.3 wird die analytische Lösung (grün) mit den Ergebnissen der numerischen Simulation zum Zeitpunkt $T = 2$ verglichen. Eine Kenngröße zur Beurteilung der Stabilität ist die CFL -Zahl (Courant-Friedrichs-Levy-Zahl) (Oertel 1995):

$$CFL = \frac{U dT}{\Delta X}. \quad (7.15)$$

Darin bezeichnet U die Geschwindigkeit mit der eine Zelle durchströmt wird, dT die Zeitschrittweite und ΔX die Ausdehnung der Zelle in Strömungsrichtung. Ist $CFL > 1$ werden die physikalischen Informationen innerhalb eines Zeitschrittes aus der Zelle befördert, was zu unphysikalischen Lösungen führen kann (Oertel 1995). Im Fall der Konvektion und Diffusion trägt sowohl die Zeitschrittweite als auch die Anzahl der Teilungen zur Genauigkeit des Ergebnisses bei. Die Ergebnisse stimmen um so besser mit der analytischen Lösung

überein, je kleiner die CFL -Zahl ist. Bei den Ergebnissen mit $CFL = 3$ ist zu sehen, dass die Ergebnisse unphysikalisch werden, da sie um die analytische Lösung oszillieren. Sehr gute Übereinstimmungen mit der analytischen Lösung wird ab $CFL = 0,75$ gefunden. Dabei wurde die Zeitschrittweite zu $dT = 0,0025$ und die Breite eines Elements zu $\Delta X = \frac{1}{30}$ gewählt. Die bisher zur Verfügung stehenden Ergebnisse werden als Anhaltspunkt der weiteren Diskretisierung verwendet.

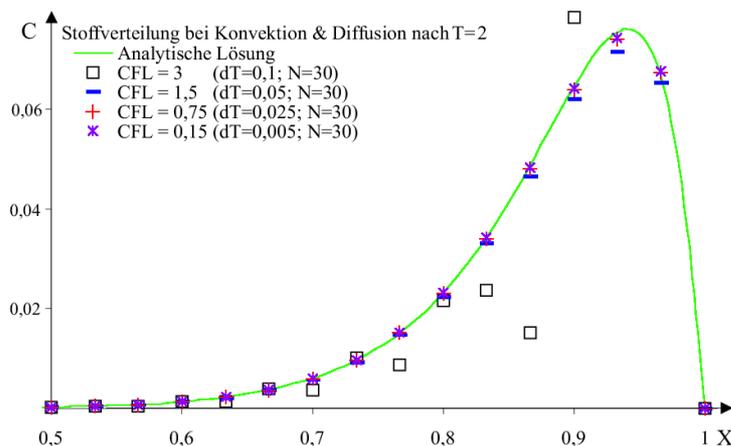


Abbildung 7.3: Vergleich zwischen den Konzentrationen aus analytischer und numerischer Lösung bei Diffusion und Konvektion nach $T = 2$.

7.4 Vergleich zwischen Netzstrukturen bei komplexeren Geometrien

Bei jeder Durchführung einer numerischen Simulation muss ein Rechnernetz in der Art und Weise gestaltet werden, dass die numerische Näherungslösung so gut wie möglich mit der (nicht erzielbaren) analytischen Lösung übereinstimmt. Zum einen werden dazu alle auftretenden Kanten im Krümmungsgebiet abgerundet. Kanten werfen zwei Probleme auf. Erstens ist die Richtung des lokalen wandnormalen und wandtangentialen Koordinatensystems nicht eindeutig. Zweitens versagt hier die eindimensionale Beschreibung der EDL. Abrundungen erlauben es jedoch, die EDL-Näherung mit kleinen Fehlern zu übernehmen (MacInnes et al. 2003).

Zum anderen muss das Netz fein genug diskretisiert werden. Daher werden Simulationen mit einer sukzessiven Verfeinerung des Netzes durchgeführt. Als Kriterium für die Güte des Netzes wird die Änderung der Konzentration an einer definierten Position im Ausgangskanal hinzugezogen. Die Verfeinerung des Netzes wird dann so lange vorgenommen, bis der

Unterschied der Konzentration an der definierten Stelle kleiner als 1% wird. Zur endgültigen Simulation wird dann die Struktur des größeren Gitters verwendet. Das Netz ist immer aus strukturierten Elementen aufgebaut. Dies erleichtert die Erweiterung auf zukünftige dreidimensionale Rechnungen und verringert den Speicherbedarf. Prinzipiell kann bei allen Mischern festgestellt werden, dass die Länge und Breite eines Elementes ungefähr $\Delta X = \frac{1}{30}$ betragen muss, um eine von weiterer Netzdiskretisierung unabhängige Lösung zu erzielen.

7.5 Mischgüte Γ

Zur Vollständigkeit werden in den nachfolgenden Tabellen weitere Simulationsergebnisse zur Mischgüte Γ dargestellt. Dies wären zum einen in Tabelle 7.1 die Mischgüte der verschiedenen Mischergeometrien bei einer Frequenz der überlagerten elektroosmotischen Strömung von $F = 0,5$ zum Zeitpunkt $T = 25$. Die Mischgüte wird entsprechend der in Kapitel 5.4.4 beschriebenen Position X_{SP} über jeweils einer halben Wellenlänge ermittelt. Zum Vergleich werden zusätzlich Mischgüten des Y-förmigen Mikromischers ohne elektrischer Erregung ($F = 0$) aufgeführt. Für jeweils eine halbe Wellenlänge λ sind die Durchschnittswerte ermittelt. In Tabelle 7.2 sind die Mischgüten Γ für einen Y-förmigen Mischer mit verschiedenen Geschwindigkeitsprofilen im Ausgang über einer ganzen Wellenlänge dargestellt. „EOF“ steht für electroosmotic flow, „PDF“ für pressure driven flow und „PDF und EOF“ steht für eine druckgetriebene Strömung, der eine entgegengerichtete elektroosmotische Strömung überlagert ist. In „PDF und EOF*“ wurden bei der Berechnung der Durchmischung sämtliche der Hauptströmungsrichtung entgegengesetzten Anteile auf Null gesetzt.

Position für $\frac{1}{2}\lambda$		1	2	3	4	5	6	7	8	\emptyset
Y-Mischer: $\Gamma =$		0,59	0,56	0,53	0,52	0,56	0,62	0,69	0,75	0,60
T-Mischer: $\Gamma =$		0,62	0,55	0,49	0,49	0,53	0,61	0,69	0,77	0,59
ε -Mischer: $\Gamma =$		0,60	0,57	0,53	0,53	0,56	0,62	0,70	0,75	0,60
Y nur PDF: $\Gamma =$		0,50	0,54	0,57	0,60	0,62	0,65	0,67	0,69	0,60
Position für λ		1	2	3	4	5	6	7	8	\emptyset
Y-Mischer: $\Gamma =$		0,77	0,76	0,74	0,74	0,75	0,79	0,82	0,86	0,78
T-Mischer: $\Gamma =$		0,79	0,76	0,73	0,72	0,74	0,78	0,82	0,87	0,78
ε -Mischer: $\Gamma =$		0,78	0,76	0,74	0,74	0,75	0,78	0,83	0,86	0,78
Y nur PDF: $\Gamma =$		0,71	0,73	0,75	0,76	0,77	0,79	0,81	0,81	0,77
Position für $\frac{3}{2}\lambda$		1	2	3	4	5	6	7	8	\emptyset
Y-Mischer: $\Gamma =$		0,87	0,86	0,85	0,85	0,86	0,88	0,90	0,92	0,87
T-Mischer: $\Gamma =$		0,88	0,87	0,85	0,85	0,86	0,88	0,90	0,92	0,88
ε -Mischer: $\Gamma =$		0,87	0,87	0,86	0,86	0,87	0,88	0,90	0,92	0,88
Y nur PDF: $\Gamma =$		0,83	0,84	0,85	0,86	0,87	0,88	0,89	0,89	0,86
Position für 2λ		1	2	3	4	5	6	7	8	\emptyset
Y-Mischer: $\Gamma =$		0,92	0,92	0,92	0,92	0,92	0,93	0,94	0,95	0,93
T-Mischer: $\Gamma =$		0,93	0,93	0,92	0,92	0,92	0,93	0,95	0,96	0,93
ε -Mischer: $\Gamma =$		0,92	0,92	0,92	0,92	0,92	0,93	0,94	0,95	0,93
Y nur PDF: $\Gamma =$		0,90	0,91	0,91	0,92	0,92	0,93	0,93	0,94	0,92

Tabelle 7.1: Mischgüte Γ für den Y-, T- und ε -förmigen Mikromischer zum Zeitpunkt $T = 25$.

Position ab X_{SP}		1	2	3	4	5	6	7	8	\emptyset
EOF: $\Gamma =$		0,41	0,44	0,46	0,49	0,51	0,54	0,56	0,58	0,49
PDF: $\Gamma =$		0,50	0,54	0,57	0,59	0,62	0,65	0,67	0,69	0,60
PDF und EOF: $\Gamma =$		0,59	0,63	0,64	0,69	0,71	0,74	0,76	0,78	0,70
PDF und EOF*: $\Gamma =$		0,58	0,62	0,65	0,68	0,70	0,73	0,75	0,77	0,69
F=0,5: $\Gamma =$		0,59	0,56	0,53	0,52	0,56	0,62	0,69	0,69	0,59

Tabelle 7.2: Mischgüte Γ für verschiedene Geschwindigkeitsprofile im Ausgangskanal.

7.6 Verwendeter Rechner

Sämtliche Simulationen werden auf einem Rechner mit zwei Prozessoren des Typs *Intel®Xeon™* CPU mit *1700 MHz* erstellt. Die Größe des First Level Cache beträgt *256KB* je Prozessor. Der gesamte physische Speicher beträgt *7,74 GB*. Der zur Verfügung stehende *Swap*-Speicher hat eine Größe von *501,95 MB*. Der Festplatten-Pufferspeicher hat eine Größe von *195,5 MB* und der Festplatten-Zwischenspeicher von *2,36 GB*. Bei dem Betriebssystem handelt es sich um eine LINUX-Version vom Distributor *Red Hat 7.2*. Für die numerischen Simulationen wird das Programm *Fidap 8.7.2* verwendet und durch eine von (Barz 2005) entwickelte Library erweitert, welche die elektrischen Kräfte in der elektrischen Doppelschicht durch adäquate Übergangsbedingungen implementiert.

Literaturverzeichnis

- Barz, D.: 2005, Ein Beitrag zu Modellierung und Simulation von elektrokinetischen Transportprozessen in mikrofluidischen Einheiten, *Wissenschaftliche Berichte FZKA 7172*, Forschungszentrum Karlsruhe.
- Barz, D. und Ehrhard, P.: 2005, Simulation of flow and mass transport in a meander microchannel subject to electroosmotic pumping, *J. Microscale Thermophysical Engineering* **9**, 305–316.
- BMBF: 2004, *Rahmenprogramm zur Förderung 2004-2009 Mikrosysteme*, Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) Referat Öffentlichkeitsarbeit.
- Boen, B.: 2004, NASA researchers customize lab-on-a-chip technology to help protect future space explorers and detect life forms, 1.6.2004, NASA NEWS 04-156.
- Bronstein, I., Semendjajew, K., Musiol, G. und Mühlig, H.: 2000, *Taschenbuch der Mathematik*, Verlag Harry Deutsch.
- Chapman, D.: 1913, A contribution to the theory of electrocapillarity, *Phylos. Mag.* **25**, 475.
- Cummings, E., Griffiths, R., Nilson, R. und Paul, P.: 2000, Conditions for similitude between the fluid velocity and electric field in electroosmotic flow, *Anal. Chem.* **72**, 2526–2532.
- Debye, P. und Hückel, E.: 1923, Zur Theorie der Elektrolyte. I. Gefrierpunktserniedrigung und verwandte Erscheinungen, *Physikalische Zeitschrift* **24**, 185–206.
- Ehrhard, P.: 2004, Strömungs- und Transportprozesse in Mikrokanälen, Skriptum.
- Gerlach, A. und Guber, A.: 2002, Sonderausgabe labfuture, *LaborPraxis* pp. 95–102.
- Gerthsen, C. und Vogel, H.: 1999, *Gerthsen Physik.*, Springer-Verlag.
- Glasgow, I., Lieber, S. und Aubry, N.: 2004, Parameters influencing pulsed flow mixing in microchannels, *Anal. Chem.* pp. 4825–4832.

- Gouy, G.: 1910, Sur la constitution de la charge électrique à la surface d'un électrolyte, *J. Phys. Radium* **9**, 457.
- Guber, A.: 2004, *BioMEMS - Mikrosystemtechnik für Life-Sciences und Medizin -I*, Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Mikrostrukturtechnik.
- Helmholtz, H.: 1879, *Studien über elektrische Grenzschichten*, *Ann. Phys. und Chem.* **7**, 337-382.
- Hunter, R.: 1981, *Zeta Potential in Colloid Science; Principles and Applications*, Academic Press, London.
- Janssens-Maenhout, G. und Schulenberg, T.: 2003, An alternative description of the interfacial energy of a liquid in contact with a solid, *J. Colloid & Interface Sci.* **257**, 141–153.
- Li, D.: 2004, *Interface Science and Technology Volume 2: Electrokinetics in Microfluidics*, Elsevier Academic Press.
- Lu, L.-H., Ryu, K. und Liu, C.: 2002, A magnetic microstirrer and array for microfluidic mixing, *J. Microelectromech. Syst.* **11(5)**, 462–469.
- MacInnes, J. M., Du, X. und Allen, R. W. K.: 2003, Prediction of electrokinetic and pressure flow in an microchannel t-junction, *Phys. Fluids* **15**, 1992 – 2005.
- Matsumoto, R., Toki, M., Ishihara, I. und Ehrhard, P.: 2005, Mixing characteristics in microchannel influenced by an electrical field, *6th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics*, April 17-21, 2005, Matsushima, Japan, pp. 62–68.
- Meisel, I.: 2004, Modellierung und bewertung von strömung und transport in einem elektrisch erregten mikromischer, *Wissenschaftliche Berichte FZKA 7029*, Forschungszentrum Karlsruhe.
- Newman, J. und Thomas-Alyea, K.: 2004, *Electrochemical Systems*, Wiley-Interscience.
- Oddy, M., Santiago, J. und Mikkelsen, J.: 2001, Electrokinetic instability micromixing, *Anal. Chem.* **73**, 5822–5832.
- Oertel, H.: 1995, *Strömungsmechanik*, Springer, Berlin.
- Roscoe, R.: 1949, The flow of viscous fluids round plane obstacles, *Philos. Mag.* **40** p. 338.
- Schwesinger, N., Frank, T. und Wurmus, H.: 1996, A modular microfluidic system with an integrated micromixer., *J. Micromech. Microeng.* **6**, 99–102.

- Shaw, D.: 1980, *Introduction to Colloid and Surface Chemistry*, Butterworths, London.
- Stern, O.: 1924, Zur Theorie der elektrolytischen Doppelschicht, *Z. Elektrochemie* **30**, 508–516.
- Weissgerber, H. und Glatz, B.: 2003, Method for providing flow rates for fluids., European Patent EP1324033.
- Yang, Z., Matsumoto, S., Goto, H., Matsumoto, M. und Maeda, R.: 2001, Ultrasonic micromixer for microfluidic systems, *Sens. Actuators A* **93**, 266–272.
- Yates, D. E. und Healy, T. W.: 1976, The structure of the silica/electrolyte interface, *J. Colloid & Interface Sci.* **55**, 9–19.
- Yi, M. und Bau, H.: 2003, The kinematics of bend-induced mixing in micro-conduits, *Int. J. Heat Fluid Flow* **24**, 645–656.
- Zhang, Y., Gu, X.-J., Barber, R. W. und Emerson, D. R.: 2004, An analysis of induced pressure fields in electroosmotic flows through microchannels, *J. Colloid & Interface Sci.* pp. 670–678.
- Zierp, J.: 1991, *Ähnlichkeitsgesetze und Modellregeln der Strömungslehre*, Braunsche Hofbuchdruckerei und Verlag, Karlsruhe.