

# Systembeschreibung und Modellierung von Mischprozessen

Dipl. Ing. C. Cupelli, Dr. P. Koltay, Prof. Dr. R. Zengerle and Dr. M. Santer

IMTEK – Anwendungsentwicklung, Universität Freiburg, Georges-Koehler-Allee 106, 79110 Freiburg

## Kurzfassung

Mischprozesse sind für die chemische Verfahrenstechnik von großer Bedeutung. Der Einsatz von Mikroreaktoren bietet eine Vielzahl von Vorteilen, u.a.: höhere Effizienz, Verkürzung der Mischdauer und thermisch genau kontrollierbare Bedingungen. Das genaue Verständnis von Mischprozessen spielt bei der Vorgabe optimaler Reaktionsbedingungen eine zentrale Rolle, insbesondere wenn die charakteristische Mischdauer aufgrund stark unterschiedlicher Eigenschaften der Reaktanden erschwert wird, wie etwa bei stark unterschiedlichen Viskositäten. In diesem Beitrag diskutieren wir die Kompaktmodellierung von Mischprozessen als Ansatz hin zur Beschreibung von Mikroreaktoren auf Systemebene: ein Mischer soll letztendlich durch den Einsatz von Netzwerksimulationen zugänglich werden. Dies ermöglicht die Beschreibung komplexer Systeme durch eine bis zu 10000-fach schnellere Simulation. Ein zentraler Punkt hierbei ist die Einteilung von Mischprozessen in systematische, modulare Operationen, die in unserem Ansatz durch getrennte, kompatible fluidische Bauteile realisiert sind. Die Modellierung von Mischprozessen im laminaren Regime lässt sich somit auf eine analytische Beschreibung für die relevanten Parameter wie z.B. Diffusionszeiten und Diffusionslängen zurückführen.

## 1 Einleitung

Mikrofluidische Systeme bekommen eine stetig wachsende Bedeutung für analytische und synthetische Prozesse in der industriellen Chemie, der Biochemie und den Lebenswissenschaften, wo Vorzüge wie etwa geringer Probenverbrauch oder definierte Reaktionsbedingungen leichter erzielt werden können als unter herkömmlichen Prozessbedingungen. Ein hohes Verhältnis von Oberfläche zu Volumen und damit gute Wärmeabfuhr ist Voraussetzung für homogen ablaufende, exotherme Reaktionen. Besonders die Möglichkeit zur Systemintegration unter Ausnutzung standardisierter Prozessabläufe aus der Mikrosystemtechnik ist hervorzuheben. Sie hat zum Konzept des *Lab-on-a-Chip* (LOAC) Systems geführt.

Eine befriedigende Beschreibung von LOAC Systemen auf einer angemessenen Abstraktionsebene bleibt jedoch eine der größten Herausforderungen der Mikrofluidik. Im Gegensatz zur Mikroelektronik, wo große Schaltkreise durch eine Netzwerksimulation beschrieben und letztlich auch entworfen werden können, werden die meisten mikrofluidischen Komponenten mit numerisch aufwändigen CFD-Simulationen analysiert. Am Beispiel eines Mikromischers, der ein wesentlicher Bestandteil vieler LOAC Systeme ist [5], zeigen wir, wie man den ineffizienten Einsatz numerisch intensiver CFD-Simulationen im Fall des laminaren Mischens auf ein Mindestmaß reduzieren kann.

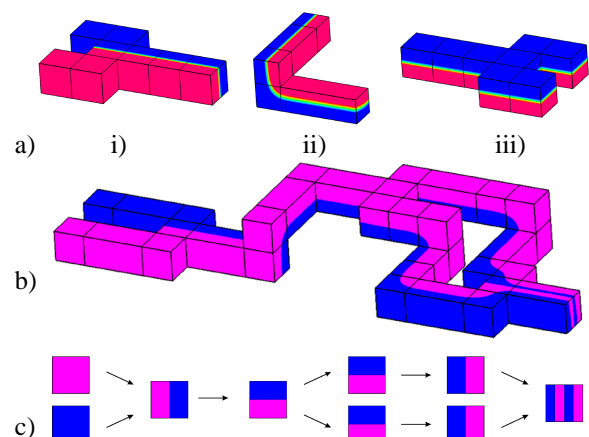
## 2 Modulares Konzept

Das Konzept, das hier verfolgt wird, kann im wesentlichen in drei Schritte unterteilt werden: Erstens muss ein Satz fluidischer Komponenten definiert werden, die eine begrenzte, aber wohldefinierte Funktion übernehmen. Zweitens müssen diese Komponenten durch eine sorgfältige Auswahl von CFD-Simulationen optimiert werden: Es muss die Kompa-

tibilität einzelner Bauteile untereinander mit den ihnen zugeschriebenen Funktionen gewahrt werden. Drittens müssen die Einzelfunktionen dann auf analytische oder empirische Kompaktmodelle abgebildet werden, die Auskunft über die wichtigsten Prozessparameter, aber auch Hinweise an den Designer geben. Im folgenden wird dieser Prozess anhand des Split-and-Recombine Prinzips für Mikromischer demonstriert, indem der Mischvorgang reorganisiert wird.

### 2.1 Fluidischer Aufbau

Die meisten Mischer sind durch komplexe, meist durch einen bestimmten Herstellungsprozess bedingte Geometrien aufgebaut. In dem modularen Ansatz, der in dieser Arbeit verfolgt wird, teilt man den Mischprozess in drei Operationen ein, siehe Bild 1 a): i) Zusammenführen zweier Flüssigkeitsströme (combine), ii) Drehung des Flussprofils um  $90^\circ$  (twist) und iii) symmetrisches Auseinanderführen (split).



**Bild 1** Split-and-Recombine Prinzip bestehend aus drei Grundoperationen: combine, twist und split.

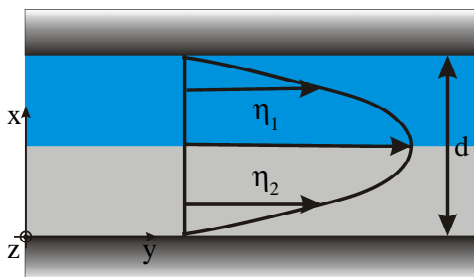
Bild 1 b) verdeutlicht, wie das Zusammenwirken der drei Komponenten einen kompletten Split-and-Recombine Zyklus ergibt, d.h. Verdopplung der Zahl der Fluidlamellen. Ein entscheidender Schritt, um eine analytische Modellierung zu ermöglichen, besteht darin, die Lamellen in einem regelmäßigen Muster zu erhalten. Diese Forderung wird dann erfüllt, wenn dies von jeder Komponente am Ein- und Ausgang gewährleistet ist. Durch die Verschaltung wird dabei Sorge getragen, dass die fluidischen Widerstände möglichst symmetrisch sind, siehe Bild 1 b). Das Flussprofil am Ausgang kann somit so modelliert werden, als seien die Fluidlamellen in einer Ebene symmetrisch zusammengeführt worden. Hierdurch vereinfacht sich die analytische Beschreibung wesentlich.

### 3 Analytischer Ansatz

Eine analytische Lösung für die Verteilung multilaminarer Strömungen unterschiedlich viskoser Fluide ist in rechteckigen Geometrien jedoch auch bei symmetrischer Verteilung nicht bekannt [3]. Man betrachtet daher zunächst die entsprechende Verteilung eines Spalts: das Flussprofil in der Mitte eines quadratischen Kanals wird durch das eines Spalts sehr gut approximiert. Dies ist zugleich auch der Teil des Kanals, der den höchsten Volumenstrom führt. Eine zweite Vereinfachung besteht darin, die Diffusion bei der Ermittlung des Flussprofils zu vernachlässigen. Dies ist im Sinne des S&R-Konzepts: Da die Diffusionslängen in jedem Schritt halbiert werden, die Diffusionszeiten aber quadratisch mit der Diffusionslänge skalieren, erwartet man, dass die Diffusion abrupt in einer bestimmten Stufe einsetzt und den Mischvorgang vervollständigt [4]. Die Aufgabe des Kompaktmodells ist somit, diese Stufe zu ermitteln und die Information als Designhinweis zur Verfügung zu stellen.

#### 3.1 Beschreibung multilaminarer Strömungen

Die Navier-Stokes Gleichungen können für den hier betrachteten Fall laminarer, voll entwickelter Strömung in einem Spalt (Bild 2) zur sogenannten Poisson-Gleichung vereinfacht werden [6].



**Bild 2** Multilaminare Strömung mit zwei Lamellen der Viskositäten  $\eta_1$  bzw.  $\eta_2$

Hierbei muss die Verteilung der Lamellendicken und der Strömungsgeschwindigkeiten aus stückweise definierten Lösungen gewonnen werden, da die Viskosität von Lamelle zu Lamelle variiert:

$$\frac{\partial p}{\partial y} = \eta_i \cdot \frac{\partial^2 u_{y_i}}{\partial x^2} \quad (1)$$

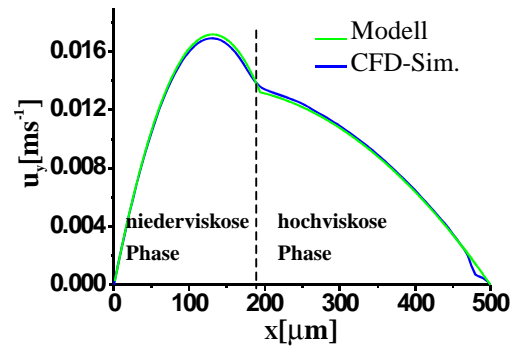
Die unterschiedlichen Gebiete werden durch Grenzflächen an den Positionen  $x_i$  getrennt. An den  $x_i$  herrscht ein Kräftegleichgewicht zwischen den Scherkräften der benachbarten Gebiete [3],

$$\eta_i \cdot \frac{\partial u_{y_i}}{\partial x} = \eta_{i+1} \cdot \frac{\partial u_{y_{i+1}}}{\partial x}, \quad (2)$$

sowie eine Stetigkeitsbedingung für die Geschwindigkeit,

$$u_{y_i} \Big|_{interface} = u_{y_{i+1}} \Big|_{interface}. \quad (3)$$

Bild 3 zeigt die analytische Lösung des Flussprofils  $u$  mit zwei Lamellen für ein Viskositätsverhältnis  $\beta = \eta_1/\eta_2 = 10$  im Vergleich zur entsprechenden CFD-Simulation. Das Modell beschreibt die hydrodynamische Aufweitung der hochviskosen Phase und somit die Diffusionslängen sehr genau.



**Bild 3** Vergleich des Flussprofils zwischen CFD-Simulation und analytischem Modell für ein Viskositätsverhältnis  $\beta=10$  bei gleichen Volumenströmen in jeder Phase.

#### 3.2 Relevante Größen des Kompaktmodells

Die Lösung von Gleichungen (1-3) liefert die wesentlichen Größen, um den Mischprozess zu beschreiben. Nimmt man den Diffusionskoeffizienten  $D_i$  und die Kanallängen  $l_{ch}$  als Eingangsparameter, so beschreibt das Modell den fluidischen Widerstand, die Diffusionslängen  $l_{Di}$  als Schätzwert für die Lamellenbreite und die mittlere Verweildauer  $l_{ch}/\langle u_i \rangle$  in einem geraden Kanalabschnitt, wobei  $\langle u_i \rangle$  die mittlere Flussgeschwindigkeit in der Lamelle ist. Der Zeitpunkt, ab dem die Diffusion im Kanal einsetzt, kann dann durch die Fourier Zahl  $Fo$  abgeschätzt werden.

$$Fo = \frac{D_i \cdot l_{ch}}{\langle u_i \rangle \cdot l_{Di}^2} > 1, \quad (4)$$

Ist der Wert größer 1, so ist die Diffusionszeit größer als die Verweildauer im Kanal. Gleichungen (1-3) können durch den Netzwerksimulator unter der Annahme gelöst werden, dass in dem Kanal ein stückweise parabolisches Geschwindigkeitsprofil  $u$  herrscht. Die Randbedingungen werden durch die üblichen „no slip“ Randbedingung  $u = 0$  an den Kanalwänden vervollständigt. Das sich ergebende implizite Gleichungssystem liefert als Lösung die Lage der Grenzflächen  $x_i$ , den Druckabfall  $\Delta p$  und die Flussrate  $\phi$ .

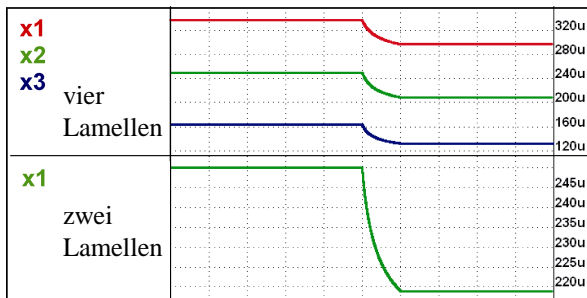
$$\Delta p \cdot R^{-1}(\eta_1, \eta_2, d, x_{i,interface}) = \phi \quad (5)$$

## 4. Implementierung des Kompaktmodells

Die Lösung des Gleichungssystems (5) wurde als Kompaktmodell in der Hardwarebeschreibungssprache VHDL-AMS implementiert, wobei als Entwicklungsumgebung SMASH 5.2.0 der Firma Dolphin Integration verwendet wurde. Das analytische Modell wurde mit CFD-Simulationen (ACE+ ESI Group) validiert, sowohl für die Spaltgeometrie als auch die quadratische Kanalgeometrie wurden Strömungsprofil, Lamellenverteilung und Druckabfall ermittelt.

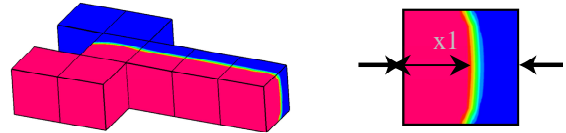
### 4.1 Numerische Validierung

Da das implizite Gleichungssystem (5) mehrdeutige Lösungen besitzt, wurde ein auf das Problem angepasster Algorithmus entwickelt, der von einer bekannten physikalischen Lösung durch stetige Variation aller Parameter ein Wechseln in einen anderen Lösungszweig verhindert. Um beispielsweise das Viskositätsverhältnis  $\beta = \eta_1/\eta_2$  einzustellen, wurde  $\eta_1$  kontinuierlich, von  $\beta = 1$  (symmetrische Lamellenverteilung zwingend) hin zum Endwert verändert.  $\beta$  wird dabei formal als parametrisch von der Simulationszeit abhängig gesehen.



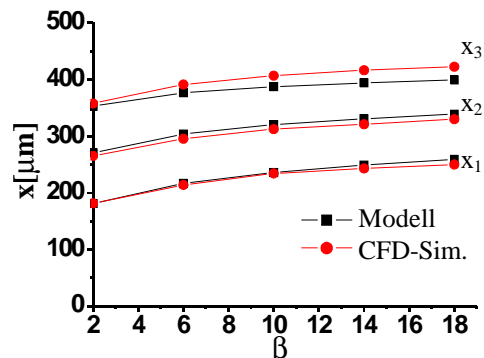
**Bild 4** Netzwerksimulation des Split-and-Recombine Mischers für ein Viskositätsverhältnis  $\beta=4$ . Dargestellt ist die Lage der Phasengrenzen im Zulauf und am Auslass (1u entspricht 1  $\mu\text{m}$ , 0 u entspricht der linken und 500 u der rechten Kanalwand).

Es ist so auch möglich, sich zeitlich ändernde Viskositäten zu emulieren, beispielsweise bei einer Temperaturerhöhung im Laufe einer Reaktion. Die numerische Stabilität des Algorithmus wurde für einen weiten Parameterbereich bis zu einem Viskositätsverhältnis 1:20 getestet. Das analytische Modell wurde mit CFD-Simulationen eines rechteckigen Kanalquerschnitts verglichen.



**Bild 5** CFD-Simulation für ein Viskositätsverhältnis  $\beta = 10$ .

Bild 5 zeigt, dass im Gegensatz zu einer Spaltströmung die Grenzfläche zwischen zwei benachbarten Fluidlamellen charakteristisch gekrümmt ist [5]. Dieser Effekt beeinflusst die hydrodynamische Aufweitung in Kanälen mit endlichem Aspektverhältnis und somit auch die Güte des Modells.

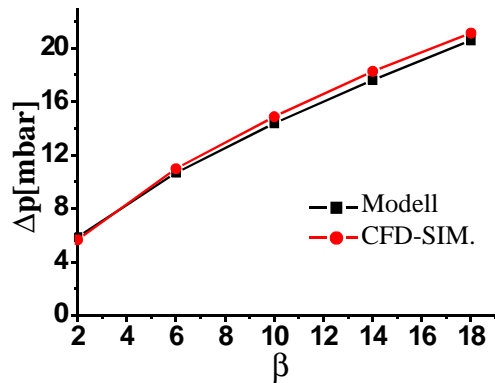


**Bild 6** Vergleich zwischen CFD-Simulationen und analytischem Modell für die Position  $x_i$  der Fluidgrenzflächen.

Bild 6 zeigt die Positionen der Grenzflächen in Abhängigkeit von einem steigenden Viskositätsverhältnis  $\beta$ . Das Modell beschreibt die zunehmende Asymmetrie des Strömungsprofils für steigende  $\beta$ . Um das Modell auf geometrische Strukturen mit quadratischem Querschnitt anzupassen, wurde aus den Simulationen eine Geometriekonstante ermittelt, die mit der für den Fall einer Einphasenströmung übereinstimmt [11]:

$$\gamma = \frac{\Delta p_{square}}{\Delta p_{slit}} \approx 2.4 \quad (6)$$

Der Druckabfall  $\Delta p$  wurde im Modell entsprechend mit  $\gamma$  skaliert. Der Vergleich ist in Bild 7 dargestellt.



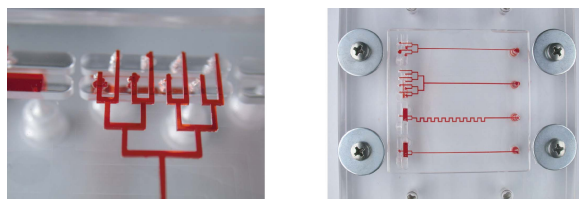
**Bild 7** Druckabfall für einen Kanal mit rechteckigem Querschnitt.

Der Vergleich zwischen dem Kompaktmodell und der CFD-Simulation in Abhängigkeit vom Viskositätsverhältnis zeigt eine gute Übereinstimmung. Lediglich eine sehr schwache Abhängigkeit des Geometriefaktors  $\gamma$  vom Viskositätsverhältnis  $\beta$  ist zu sehen, so dass man  $\gamma$  in guter Näherung als konstant annehmen kann.

## 5. Experimente

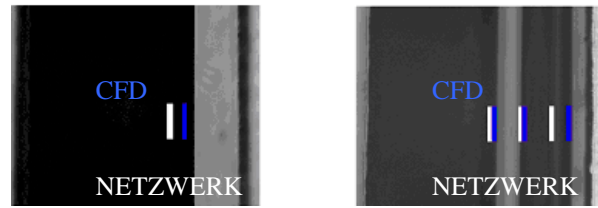
Das Kompaktmodell wurde experimentell mit Wasser-Glycerinmischungen charakterisiert. Die fluidischen Strukturen, die zur experimentellen Charakterisierung verwendet wurden (200 $\mu$ m bzw. 500 $\mu$ m laterale Größe), wurden mittels eines Rapid Prototyping Verfahrens (SU-8/PDMS) hergestellt.

Die Kanalstrukturen wurden in einer PMMA-Halterung integriert, um sie von außen fluidisch kontaktieren zu können. Um das Laminationsmuster eines Auslasskanals möglichst einfach charakterisieren zu können, wurde eine symmetrische, verzweigte Einlassstruktur verwendet (Bild 8).



**Bild 8** Interdigitale Einlassstruktur zur Erzeugung eines regelmäßigen Laminationsmusters.

Zur optischen Messung diente ein Standardmikroskop (Zeiss Axio Phot). Zur Visualisierung wurde das jeweils höherviskose Fluid mit Tinte eingefärbt. Die Abweichung zwischen den numerischen Ergebnissen und den Experimenten beträgt sowohl für CFD-Simulation als auch Netzwerksimulation weniger als 10 % (Bild 9).



**Bild 9** Laminationsmuster eines multilaminaren Flusses für ein Viskositätsverhältnis  $\beta \sim 27$ .

## 6 Zusammenfassung

Zusammengefasst zeigen die Ergebnisse, dass es trotz der Komplexität von Mischprozessen prinzipiell möglich ist, Kompaktmodelle für elementare Bauelemente zu entwickeln, die zur Analyse auf Systemebene geeignet sind. Dies ermöglicht die Beschreibung komplexer Systeme durch eine bis zu 10000-fach schnellere Simulation. Der entscheidende Ansatz hierzu liegt in der systematischen Einteilung des Mischvorgangs in überschaubare, definierte Teilprozesse. Dies wurde hier am Beispiel eines Split-and-Recombinevorgangs aufgezeigt. Die Beschreibung des Strömungsprofils und des Mischfortschritts konnte letztlich auf die Verhältnisse in geraden, quadratischen Kanalsegmenten zurückgeführt werden. Auf dieser Basis wurde ein Kompaktmodell implementiert, das den fluidischen Widerstand, das Strömungsprofil und Diffusionslängen abschätzt.

## 7 LITERATUR

- [1] S. Hardt, V. Hessel and C. Hofmann, Lab-on-a-Chip, 4, pp. 65-69, 2004
- [2] N. Schwesinger, T. Frank and H. Wurmus, Journal of Microengineering, 6, pp. 99-102, 1996
- [3] P. J. Styles and D. F. Fletcher, Lab-on-a-Chip, 4, pp. 121-124, 2004
- [4] S. Hardt, H. Pennemann and F. Schönfeld, accepted for publication in the Journal of Microfluidics and Nanofluidics
- [5] P. Yager, E. Oosterbroek, A. van den Berg, Lab-on-a-Chip, Elsevier, 2004
- [6] E. Truckenbrodt, Strömungsmechanik, 1, Springer, 1980
- [7] J. Cooper et al., Electrophoresis, 21, pp. 27-40, 2000
- [8] E. L. Cussler, Cambridge University Press, 1997
- [9] J. Ducree et al., Micro Total Analysis System Conference Proceedings, 1, 2004.
- [10] F. Schönfeld et al., Nanotech Conference Proceedings, 1, pp. 378 – 381, 2004.
- [11] H. M. Schaedel, Friedr. Vieweg & Sohn, 1979