

開放式數位微流體操控晶片研究

Droplet Handling on an Open-Architecture Digital Microfluidic Chip

莊漢聲、楊正財、謝長原、范光錢、饒達仁

Han-Sheng Chuang, Cheng-Tsair Yang, Chang-Yuan Hsieh, Guang-Chyan Fan, Da-Jeng Yao

傳統電濕法 (electrowetting) 透過對微液珠的操控可以形成一種主動式的分析載台，現已逐漸在生醫領域產生革新性的影響。本文藉由對電濕法原理的研究進而改變設計，以發展單面電極的操控技術 (SEI-EW)，其主要目的乃希望透過開放式的新系統，以增加多面向的可應用範圍。目前已完成基本理論分析與實際液珠移動的控制，結果顯示以雙光罩製程搭配不等尺寸的施壓與接地電極，對液珠驅動有正面性的助益。

A digital microfluidic platform has been developed to manipulate droplets on the basis of electrowetting. It results in an innovative influence on biomedical applications. In this article, we modified the conventional layout to a form of single-side electrode induction electrowetting (SEI-EW), so that more applications could be included through the open-architecture system. So far, the fundamental analysis of revised Lippmann-Young equation and droplet actuation on the one-dimensional electrodes were investigated. The results indicated that the state of the art design of SEI-EW could be greatly promoted its applicability by using dual-mask fabrication and in-equalizing the sizes of energized and grounded electrodes.

一、前言

電濕法 (electrowetting) 是利用電壓造成表面能變化進而改變液體與接觸面親水狀態的一種現象。過去多年來主要的發展多著眼於光學應用產業⁽¹⁻²⁾，直到近來在生醫與微機電熱潮的帶動下，才逐漸在微流體的控制開發上開啟了新的一頁。傳統上，即使在微觀下，液體的操控往往仍是在連體的基礎上透過外來的驅動源搭配已規劃好的固定流道

來做分析。顯而易見地，其缺點包含高壓損、檢體浪費、交互污染、反應效率低 (層流、低雷諾數) 與流道功能被動單一等。為改善這些缺點，許多研究著重在製作內嵌式的微幫浦⁽³⁾，以提升效率；然而在連體所構成的龐大體積下，微幫浦所貢獻的努力在其他方面似乎成效有限且顯得有點微不足道。追根究底，唯有另類思考將龐大的液體徹底打散或稱為數位化 (digitization)，才有機會在其他方面畢其功於一役。

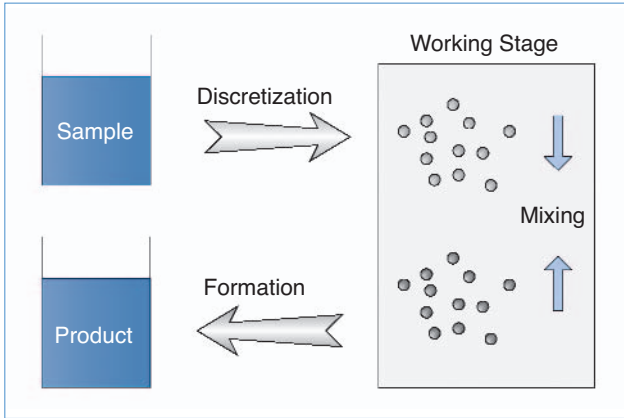


圖 1. 數位流體的操作示意圖。

基本概念詳如圖 1 之說明，在其後半段，從液體離散、操作分析到合成，即可藉由所謂電濕法的技術來達成。目前該技術的發展大多沿襲自加州大學洛杉磯分校 (UCLA) C. J. Kim 教授⁽⁴⁾ 或杜克大學 (Duke University) R. B. Fair 教授⁽⁵⁾ 所提出上下雙面封閉式電極液珠控制的方式，然而在一般實用的情況下，使用者往往有很多機會仍需要對檢體進行額外的處理程序。因此本文希望藉由對基礎電濕法的研究，進而拓展其功能成為陣列式單面電極液珠操控面板，增加本技術在各方面的可應用性。文中所闡述的部分包括單面液珠電壓與接觸角公式、液珠在傳統與目前設計兩種情況下移動性比較，以及液珠移動設計的探討。最後產出的成果將持續投入作為下一階段大面積陣列式電極設計的基礎研究。

二、單面電極數位流體控制 (SEI-EW)

1. 等效電路

我們在本文中提出單面電極控制液珠的想法，由於不同於傳統上下板夾層控制的方式，因此有必要從理論的觀點來評估其操控的可行性。首先我們由 Lippmann⁽⁶⁾ 於 1875 年的實驗知道改變外加電荷 (electrostatic charge) 即可以改變材料表面性質影響毛細力 (capillary force) 的理論 (如圖 2)，具體來說，就是當一個外來電壓施加在一個固-液接觸體的兩端時，電荷重新分布後將造成其界面的表面張力 (γ_{SL}) 降低，其關係可表示為：

$$\begin{aligned}\gamma_{SL}(V) &= \gamma_{SL}|_{V=0} - \frac{C}{2} V^2 \\ &= \gamma_{SL}|_{V=0} - \frac{\epsilon_0 \epsilon}{2\gamma_{lg} t} V^2\end{aligned}\quad (1)$$

其中 C (F/m^2) 代表液珠覆蓋表面之單位面積電容值，式中 t 代表絕緣層的厚度； $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12} F/m$ 為真空下的介電常數； ϵ 表示絕緣層的相對介電常數。當無外來施加電壓時， V 為 0。另外再代入 Young 所提出之表面張力關係式到公式 (1) 時，最後便可得到電濕法中常用的電壓與接觸角度關係式，稱為 Lippmann-Young 方程式：

$$\cos \theta_c = \cos \theta_0 + \frac{\epsilon_0 \epsilon}{2\gamma_{lg} t} V^2 \quad (2)$$

由於我們希望藉由將上層的接地端設計到與下面電極同一邊而形成單邊控制的型態，因此原本百分之百受液珠覆蓋的電極面積必定會小於原來的比例。另外我們也提出以蓮花效應取代鐵氟龍的設計，因此必須特別注意的是表面粗糙的特性將造成絕緣層的厚度變化與固液接觸比例的改變。根據以上這些因素對液珠感受到的電荷可能的影響情形，我們可對公式 (2) 的 Lippmann-Young 方程式做出相對應的修正，而成為以下的方程式：

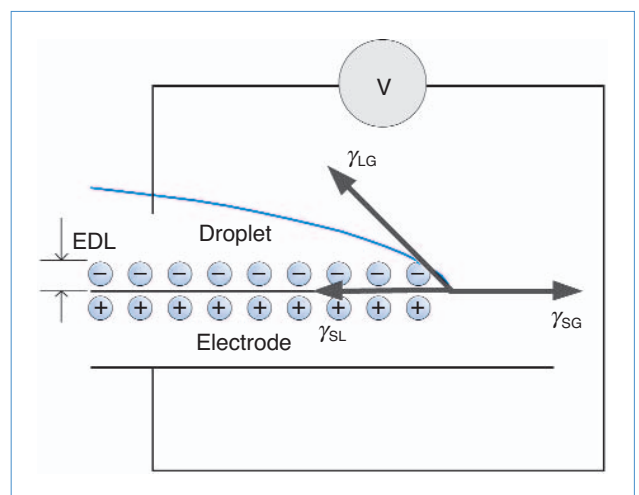


圖 2. 基本電濕法原理說明圖。

$$\cos\theta_c = \cos\theta'_0 + \frac{\epsilon_0\epsilon}{2\gamma_{lg}} \left(\frac{\phi_s}{t_1} + \frac{1-\phi_s}{t_2} \right) V^2 \quad (3)$$

其中 ϕ_s 表示 Cassie 粗糙度比； t_1 與 t_2 分別表示與液珠接觸的絕緣層厚度與未接觸的厚度。 $\cos\theta'_0$ 由粗糙面最後平衡之能量狀態決定，一般根據液珠在微觀下對粗糙面浸潤的程度會有兩種情形，稱為 Wenzel 法則與 Cassie 法則。Wenzel 法則適用於液珠完全浸潤的情況，而 Cassie 法則則適用於完全不浸潤的情形；若屬 Cassie 的情況則 t_2 為分母這一項需為 0。Neelesh A. Patankar⁽⁷⁾ 曾在文章中提到液珠在粗糙面上平衡時的能量為：

$$G = \gamma_{lg} \left[9\pi\Omega^2(1 - \cos\theta'_0)^2(2 + \cos\theta'_0) \right]^{1/3} \quad (4)$$

其中

$$\cos\theta'_0 = r_w \cos\theta_0 \text{ (適用 Wenzel 狀態)}$$

$$\cos\theta'_0 = \phi_s \cos\theta_0 + \phi_s - 1 \text{ (適用 Cassie 狀態)}$$

在此 Ω 代表液珠的體積， r_w 表示 Wenzel 粗糙係數， θ_0 表示液珠與物質表面之原始接觸角。若要決定 θ'_0 最終為何，則要看何者代入公式 (4) 後所得到的能量值最低即為所求。通常以臨界角度 ($\theta_{critical} = \cos^{-1}[(\phi_s - 1)/(r_w - \phi_s)]$) 來判斷，當 $90^\circ < \theta_0 < \theta_{critical}$ 時，為全濕潤之均勻狀態，適用 Wenzel 公式；當 $\theta_{critical} < \theta_0 < 180^\circ$ 時，為液-汽交錯之異質結構適用 Cassie 公式。最後由公式 (3) 所導出結果顯示，其接觸角將隨著電壓的增加而減少，然而由於 ϕ_s 比例參數的關係，使得在與公式 (2) 相同的電壓下卻僅能產生較小的調變效果。

我們由 M. C. Wu⁽⁸⁾ 與 C. J. Kim⁽⁹⁾ 的文章中推斷出單面電極液珠控制的等效電路如圖 3 所示。由於 $R_{water} \ll R_i$ ，因此大部分的電壓降都產生在電極兩端，液珠在此可以視作一導體。此外，由於兩端的材質一致，假設液珠為跨接在兩極中間的情況時，消耗的電壓降相同，也就是說當外部施加電壓 V 的時候，實際上在電極所得到的電壓僅為原來的一半： $V/2$ 。代入公式 (3) 後修改得到：

$$\cos\theta_c = \cos\theta'_0 + \frac{\epsilon_0\epsilon}{8\gamma_{lg}} \left(\frac{\phi_s}{t_1} + \frac{1-\phi_s}{t_2} \right) V^2 \quad (5)$$

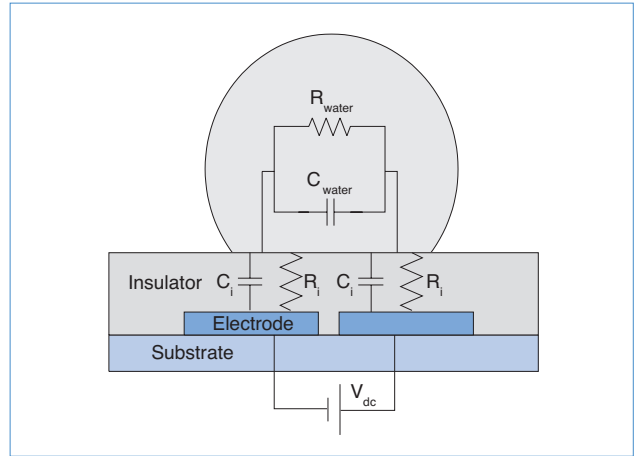


圖 3. 單面電極之等效電路圖。

根據這項公式，在塗佈鐵氟龍疏水層的情況下時， t_2 項為零， t_1 項即為絕緣層厚度且 $\phi_s = 1$ ，則繪出圖 4 之理論預測與實驗關係圖。實線表示公式 (5) 的預測值，方形點表示實驗值，可以發現兩者的關係具有滿大的一致性，證明本理論公式的確符合所提出單面電極液滴變化的趨勢。在較高電壓處，實驗值由於角度已趨近飽和，因此會逐漸脫離預測曲線而達到水平狀態⁽¹⁰⁾，這也是在高壓時會產生偏差的主因。

2. 內壓差對液珠可動性探討

由 Young-Laplace 方程式得知，液珠外形半徑與其內壓的關係為：

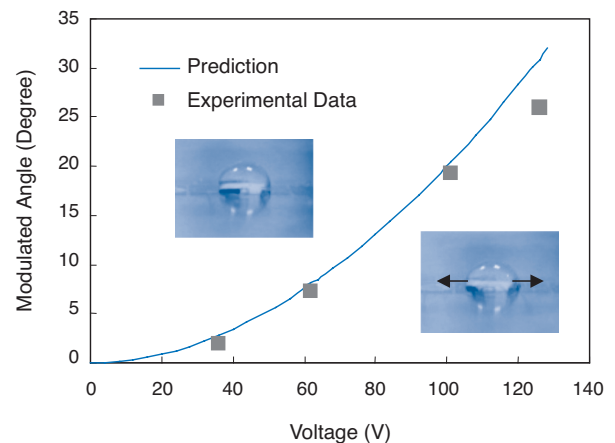


圖 4. Lipmann-Young 公式修正後在單面電極施加電壓對液珠接觸角變化情形。

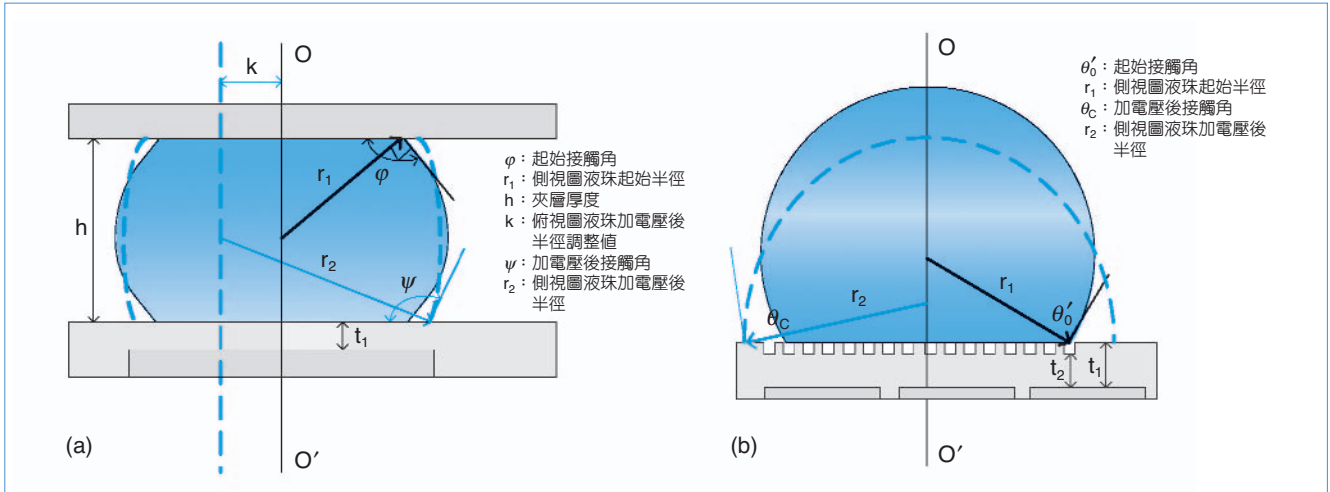


圖 5.(a) 傳統雙面電濕法與目前 (b) 單面電極控制所增成液珠內壓變化推導模型。

$$\Delta P = \gamma_{lg} \left(\frac{1}{R} + \frac{1}{r} \right) \quad (6)$$

其中 R 與 r 分別是由液珠俯視與側視時互相垂直的兩個液珠半徑。這裡必須注意的是，此關係中仍未包含液珠因與表面接觸所受的阻力影響，所以表面上根據公式 (6) 似乎只要微施加電壓即可造成移動，但由於液珠仍可能必須抵抗其他阻力因素，所以實際上仍會有最小電壓值的限制。

在此小節當中，我們將就內壓差的觀點根據圖 5 來推導理論公式，並利用模擬軟體 (MathCAD) 繪製其與電壓的關係圖形，分別探討在傳統電濕法與單面電極控制的條件下，二者表現的差異性。

(1) 傳統電濕法液珠內壓變化推導

假設液珠體積一定，在受電壓感應的瞬間，液珠變形，則根據公式 (6) 的 Young-Laplace 方程式得知變形一方壓力小於原來之壓力，因此液珠會向變形的方向移動以平衡壓力，假設這個壓差的值愈大表示移動的趨勢愈明顯。雖然實際上很難去準確計算這瞬間的壓差值，但藉由這項原則，我們仍可以從液珠整體在兩個平衡狀態的壓力差去推估出這項促使液珠移動的的變化趨勢。根據圖 5(a) 所示，不考慮重力的情況下，假設夾層厚度 h 與體積 Ω 皆為固定值，因此可得知液珠圓弧半徑 r 是隨接觸角而改變，於是我們得到起始狀態的 R_1 、 r_1 分別為：

$$R_1 = r_1 = \frac{-h}{2 \cos \phi} \quad (7)$$

所以

$$P_0 - P_{air} = \gamma_{lg} \left(\frac{-4 \cos \phi}{h} \right) \quad (8)$$

施電壓後的半徑分別為

$$r_2 = \frac{-h}{2 \cos \psi} \quad (9)$$

$$R_2 = r_2 - k = \frac{-h}{2 \cos \psi} - k \quad (10)$$

其中 ϕ 為液珠原始接觸角， ψ 為親水後接觸角。代入相同公式後求出壓力變化為：

$$P_V - P_{air} = \gamma_{lg} \left(\frac{-2 \cos \psi}{h} - \frac{2 \cos \psi}{h + 2k \cos \psi} \right) \quad (11)$$

最後兩者的壓差為

$$\begin{aligned} \Delta P_D &= P_0 - P_V \\ &= 2\gamma_{lg} \left(\frac{\cos \psi - 2 \cos \phi}{h} + \frac{2 \cos \psi}{h + 2k \cos \psi} \right) \end{aligned} \quad (12)$$

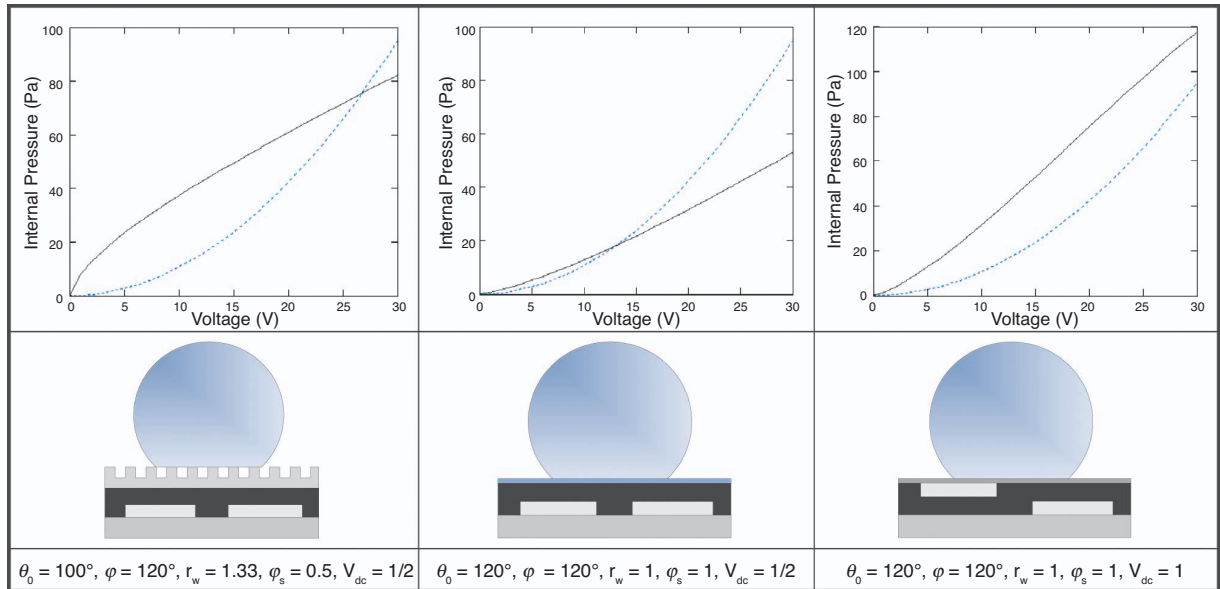


圖 6. SEI-EW 在不同條件下與傳統方法之可動性比對一覽表。黑色實線表示 SEI-EW 的結果，藍色虛線表示傳統的結果，液珠體積約 3 μL 。

(2) 單面電極液珠內壓變化推導

由於單面電極下的液珠軸互相對稱，因此根據圖 5(b)，我們可以得到 R 與 r 的值相等。在起始狀態下壓力為：

$$P_0 - P_{\text{air}} = 2\gamma_{\text{lg}} \left[\frac{\pi(1 - \cos\theta'_0)^2(2 + \cos\theta'_0)}{3\Omega} \right]^{1/3} \quad (13)$$

施電壓後的壓力狀態為：

$$P_V - P_{\text{air}} = 2\gamma_{\text{lg}} \left[\frac{\pi(1 - \cos\theta_c)^2(2 + \cos\theta_c)}{3\Omega} \right]^{1/3} \quad (14)$$

其中 θ'_0 為液珠原始接觸角， θ_c 為親水後接觸角。兩者在水平方向壓力差為：

$$\Delta P_s = 2\gamma_{\text{lg}} \left\{ \frac{\pi}{3\Omega} \left[(1 - \cos\theta'_0)^2(2 + \cos\theta'_0)\sin\theta'_0 - (1 - \cos\theta_c)^2(2 + \cos\theta_c)\sin\theta_c \right] \right\}^{1/3} \quad (15)$$

3. 內壓比對模擬結果

根據以上推導的公式，我們針對內壓力差在輸入電壓變化時的情形進行分析，由以下幾個方程式

來加以比較：(1) 單面電極取代傳統雙面的可行性；(2) 蓮花效應取代目前鐵氟龍的疏水效果；(3) 電極鋪陳的設計方向。經由模擬後之結果整理如圖 6 所示。其中 θ_0 為單面電極啟始接觸角 ($V = 0$)， ϕ 代表雙面電極之啟始接觸角 ($V = 0$)， r_w 為 Wenzel 之粗糙度比， ϕ_s 為 Cassie 之粗糙度比。

由以上三種不同條件的比較結果顯示，相同電壓操作條件下，單面電極驅使液滴移動的能力小於傳統雙面電極，然而適當的粗糙度設計卻可以有效提升液滴接觸角的控制效果，進而幫助液滴移動。此外，若考量到電路雙重壓降的影響時，圖 6 第三種的結果 (最右邊) 顯示可以二層光罩製作電極來避免這種損失，如此一來壓力差便可大幅提升，甚至優於原來傳統電濕法。值得注意的是在此模擬當中，大致還是在 Wenzel 的適用範圍且並未考慮其他複雜的阻力關係；若是 Cassie 的情況，則根據公式 (5) 來看靜電力的表現應該會更差。

三、液珠傳輸操控設計

欲操控液珠進行分析，最基本的動作莫過於傳送一顆單液珠。只要能控制液珠在面板上運動的方向，很多工作便能接下去進行。在此，單面電極對

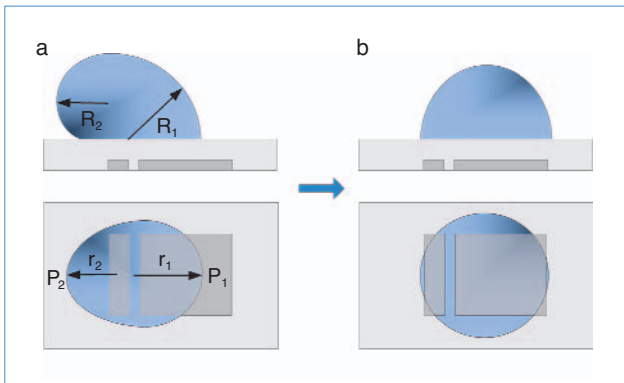


圖 7. 初步控制液珠移動方向之電極尺寸設計構想。

液珠的感應並不像傳統雙面式的那般直覺，由於施壓與接地端皆在同一面，加上液珠理論對正負電的反應並無明顯差異，因此設計上必須另外考量適當的導引機制。已知圖 3 之等效電路對不同的電極覆蓋面積會引起不等的電容效應，進而在接觸線 (contact line) 的地方形成表面張力影響變形的方向與程度，大致上是面積大的表面張力愈小⁽¹¹⁾；如此便無法藉由面積差異的設計來控制方向。為排除這種效應，上一節中模擬以上下二層光罩製作電極的方式正好可提供小面積電極的電容接近導通狀態 (趨近無限大)，屆時壓降主要將落在另外一邊而得到大面積一大表面張力的預期結果。據此可提出如圖 7 的基本方向控制機制，當液珠在狀態 a 時，受到一電壓的改變而影響表面能分布，較大的電極掌控較長的接觸線，因而在親水狀態下有較大的合力曳引液珠向右方移動，最後兩者在狀態 b 時達到平衡。進一步延伸的結果，小面積的電導線將僅擔任提供電壓的任務，而大面積的電極則可以鋪陳成為陣列式的設計，當切換接地狀態於不同的電極時，則提供液珠在平面上前後左右移動的控制依據。最後圖 8 說明實際實驗時，接地狀態在上下電極交替切換，液珠也能成功隨著切換上下移動。

四、未來產業應用

單就電濕法技術而言，目前已可數位式控制液珠在平板上快速的移動，其速度可達 25 cm/s。在此所使用之液珠體積僅約為幾十奈升 (nanoliter) 到



圖 8. 實際液珠推動結果。左圖：上排電極接地；右圖：下排電極接地。

幾微升 (microliter)，便能很有效率的處理微流體的運送、結合、分割及混合。運用這種技術的裝置擁有可減少昂貴試劑 (reagents) 的使用量及縮短分析時間等優點，因此相當適合進行製藥與生技研究及微化學反應與分析研究。由於其體積小與耗能低，更設計成攜帶型戶外檢測儀器進行水質、食品等的即時檢測，如圖 9 所示。

目前已知 R. B. Fair⁽¹²⁾ 的研究團隊已使用該技術進行人類全血、血漿、血清、尿液、唾液、汗液及眼淚之醫療檢測研究，成功驅動這些人類體液與試劑 (例如 glucose、lactate、pyruvate、glutamate 等) 之混合反應而得到初步之成果。

電濕法主要係以間歇電場改變液珠之表面能而驅動液珠流動，其所需能量低於 10 mW，適合用於無噪音電子散熱系統⁽¹³⁾，例如光學投影機、筆記型電腦等。此外，當液珠之表面能受施加的電場而改變時，其接觸角亦隨之改變，此液珠即為一可變焦之透鏡而可應用於光學系統，此變焦效能遠高於傳統之光機系統⁽¹⁾。若改變此液珠為金屬液體時，例如水銀，可為變焦反光鏡或光開關⁽¹⁴⁾。

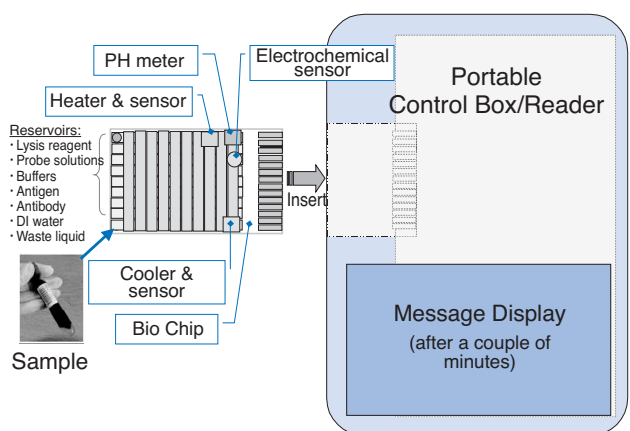


圖 9. 攜帶型電化學式數位微流體檢測儀器。

五、結論

藉由本研究的進行，文中我們針對單面電極電濕法 (SEI-EW) 這種開放性的微流系統的可行性從理論分析到實際驗證做了完整的評估。理論的部分，經由修正後的 Lipmann-Young 方程式，我們分別從液珠內壓差與表面能差的關係去比較傳統雙面電濕法與目前所提出方式的優缺點，結果顯示：

- (1) 低電壓下，均勻浸潤的粗糙面應有助於提高 SEI-EW 上液珠的可動性，然而隨著進入到異質界面的超高疏水結構時，靜電力對其發揮效果將有限。此外在較高壓時，不論塗佈鐵氟龍或製作粗糙面都仍劣於傳統電濕法。
- (2) 由等效電路分析，單層光罩所製作出來的平台會使電壓經過二次相等的壓降而減低原本電濕的效應；若能使用雙光罩將壓降減為只通過其中一個，則不論搭配鐵氟龍或蓮花效應的情況皆能大幅提高液珠驅動的效率。

至於在單面電極上傳輸的設計，發現液珠受底下感應電極面積大小在接觸線上會產生不同的移動狀況。也就是說，當兩邊電極同時必須通過相同的絕緣層時，液珠將受小面積電極的合力拘束而無法動彈；反之，若使壓降僅通過大面積的絕緣層時，液珠便能朝預定方向移動。藉此以一細導線為穩定電壓提供來源，當開關在不同的電極間導通 (接地) 時，產生電濕的電極便會牽引液珠往控制的區域前進而達到基本傳輸操控的目的。

相較於傳統雙面夾板的電濕法，開放式的設計有助於提升該技術在使用時的靈活度，譬如研究人員可以在過程當中隨時加入或獲取任何分析檢體。本文藉由對單面電極的理論分析與實作經驗中初步建立研發能量，並且成功設計出可簡易操控液珠傳輸的方法，希望可對未來這方面的發展有一定程度的貢獻。

參考文獻

1. B. Berge and J. Peseus, *Eur. Phys. J. E*, **3**, 159 (2000).
 2. N. K. Sheridan and L. A. Calif, *US Patent*, 5757345 (1998).
 3. N. T. Nguyen, X. Huang, and T. K. Chuan, *Transactions of the ASME*, **124**, 384 (2002).
 4. S. K. Cho, H. Moon, and C. J. Kim, *J. Microelectromechanical System*, **12**, 70 (2003).
 5. M. G. Pollack, R. B. Fair, and A. D. Shenderov, *J. Appl. Phys.*, **77**, 1725 (2000).
 6. M. G. Lippmann, *Ann. Chim. Phys.*, **5**, 732 (1875).
 7. N. A. Patankar, *Langmuir*, **19**, 1249 (2003).
 8. P. Y. Chiou, Z. Chang, and M.C. Wu, *TRANSDUCERS, Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems*, 12th International Conference, **1**, 468 (2003).
 9. J. Lee and C. J. Kim, *J. Microelectromechanical Systems*, **9** (2), 171 (2000).
 10. C. Quilliet and B. Berge, *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, **6**, 34 (2001).
 11. A. Torkkeli, *Droplet Microfluidics on a Planar Surface*, Dissertation, Espoo, Finland: VTT, 87 (2003).
 12. V. Srinivasan, V. K. Pamula, and R. B. Fair, *Lab on a Chip*, **4**, 310 (2004).
 13. V. K. Pamula and K. Chakrabarty, *Proceedings of the 13th ACM Great Lakes Symposium on VLSI*, Washington DC, USA, 84 (2003).
 14. J. Simon, S. Saffer, and C. J. Kim, *Proc. IEEE Micro Electro Mechanical Systems Workshop*, San Diego, CA, USA, 515 (1996).
-
- 莊漢聲先生為國立成功大學機械碩士，現任工業技術研究院量測技術發展中心副工程師。
 - 楊正財先生為國立台灣大學造船博士，現任工業技術研究院量測技術發展中心正工程師。
 - 謝長原先生為國立成功大學電機碩士，現任工業技術研究院機械工業研究所副工程師。
 - 范光錢先生為國立清華大學動力機械工程學系博士班學生，現任工業技術研究院系統與航太技術發展中心工程師。
 - 饒達仁先生為美國加州大學洛杉磯分校機械工程博士，現任國立清華大學微機電系統工程研究所助理教授。
 - Han-Sheng Chuang received his M.S. in mechanical engineering from National Chen Kung University. He is currently an associate engineer at the Center for Measurement Standards, Industrial Technology Research Institute.
 - Cheng-Tsair Yang received his Ph.D. in engineering science and ocean engineering from National Taiwan University. He is currently a senior engineer at the Center for Measurement Standards, Industrial Technology Research Institute (ITRI).

- Chang-Yuan Hsieh received his M.S. in electrical engineering from National Chen Kung University. He is currently an associate engineer at the Mechanical Industry Research Laboratories, Industrial Technology Research Institute.
- Guang-Chyan Fan is a Ph.D. student in the Department of Power Mechanical Engineering at National Tsing Hua University. He is currently an engineer at the Center for Aerospace and Systems Technology, Industrial Technology Research Institute.
- Da-Jeng Yao received his Ph.D. in mechanical engineering from the University of California at Los Angeles, USA. He is currently an assistant professor in the Institute of Microelectromechanical System at National Tsing Hua University.

作者聲明

本人與研究生闕郁倫、謝進華、張睦東在貴刊民國九十三年十二月出版的第二十六卷第三期第 13 頁中刊出的文章「穿透式電子顯微鏡於奈米科技上的應用及發展」，其中簡介高分辨電鏡的原理，有部分內容與第二十四卷第三期中郭行健先生所著「高分辨電子顯微鏡技術在三五族化合物半導體工業上的應用」雷同，此段文章在闕郁倫先生的執筆過程中，引述該文未符一般撰文規範，侵犯貴刊及郭先生的著作權，在此謹致上最深的歉意，並撤銷本文章在貴刊發表之有效性。

周立人 敬上

編輯室啟事

本刊針對上述事件，謹向郭行健先生與讀者致歉。

編輯室 敬上