

미세유체 채널 내에서 열영동에 의한 입자이동 제어

소주희* · 구형준**†

*한국생산기술연구원 휴먼융합기술그룹
 15588 경기도 안산시 상록구 향가울로 143
 **서울과학기술대학교 화공생명공학과
 01811 서울특별시 노원구 공릉로 232

(2019년 6월 27일 접수, 2019년 7월 11일 수정본 접수, 2019년 7월 11일 채택)

Thermophoretic Control of Particle Transport in a Microfluidic Channel

Ju-Hee So* and Hyung-Jun Koo**†

*Human Convergence Technology R&D Group, Korea Institute of Industrial Technology, 143, Hangeul-ro, Sangnok-gu, Ansan-si, 15588, Korea
 **Department of Chemical & Biomolecular Engineering, Seoul National University of Science & Technology,
 232, Gongneung-ro, Nowon-gu, Seoul, 01811, Korea

(Received 27 June 2019; Received in revised form 11 July 2019; accepted 11 July 2019)

요 약

열영동은 매질의 온도 구배에 의해 입자가 이동하는 현상이다. 본 논문에서는 미세유체 채널에서 입자의 열영동 현상에 대해서 논의한다. 흐름이 없는 비유동 채널에서 열원인 백금 와이어에 가해지는 전압에 비례해서 열영동에 의한 마이크로 입자의 이동이 더 크게 나타남을 확인하였다. 전압에 따른 백금 와이어 주변 온도 변화는 Callendar-van Dusen 식을 이용하여 예측하였다. 동일한 시스템에서 나노 입자의 열영동 현상을 관찰한 결과, 나노 입자도 마이크로 입자와 유사한 열영동 거동을 보임을 확인하였다. 마지막으로 Y 모양 미세유체 채널을 제작하고 백금 와이어 열원을 채널 내에 설치하여, 채널을 흐르는 현탁액 내의 입자의 열영동 현상을 구현하고, 이를 기반으로 현탁액의 흐름을 제어할 수 있음을 보인다.

Abstract – Thermophoresis is a transport phenomenon of particles driven by a temperature gradient of a medium. In this paper, we discuss the thermophoresis of particles in microfluidic channels. In a non-fluidic, stagnant channel, the thermophoretic transport of micro-particles was found to be larger in proportion to the voltage applied to the platinum wire heat source installed in the channel. The variation of the temperature around the platinum wire depending on the voltage was estimated, by using the Callendar-van Dusen equation. The thermophoretic behavior of nano-particles in the same system was observed, which is similar to that of the microparticles. Finally, we fabricated a Y-shaped microfluidic channel with a platinum wire heat source installed in the channel, to realize the thermophoretic phenomenon of the particles in the suspension flowing through the channel. It is shown that the flow of the suspension can be controlled based on the thermophoretic principle.

Key words: Thermophoresis, Microfluidic channels, Microparticles, Nanoparticles, Transport

1. 서 론

미세유체 시스템에서 입자의 분리 및 흐름의 제어는 가장 보편적이고 필수적인 기능 중의 하나로, 유체 및 입자의 유체역학적 및 물리적 성질을 이용하거나, 전압이나 열을 이용한 전기영동, 유전영동, 열영동 등의 방법이 이용되어 왔다[1-6]. 전기영동은 인가하는

전압의 크기와 방향에 따라서 효과적으로 입자의 거동을 제어할 수 있으나 입자의 크기와 전하가 유사한 경우나 전하를 띄지 않는 경우는 적용하기가 어렵다. 유전영동은 전하를 띄지 않는 입자에도 적용이 가능하나, 불균일한 전기장을 형성하기 위해 추가적인 전극 패터닝 공정을 필요로 한다. 이에 반해, 열영동은 온도차가 있으면 손쉽게 관찰할 수 있으며, 열영동 힘의 크기는 입자의 크기뿐만 아니라 화학조성 등에도 영향을 받기 때문에 다양한 입자의 이동 제어 및 분리에 이용될 수 있다[7-9].

열영동은 매질의 온도 구배에 의해 입자가 이동하는 현상이다. 높은 온도 영역에 있는 입자는 낮은 온도 영역에 있는 입자보다 더 큰 운동에너지를 가지고, 주변 입자들과 더 큰 에너지로, 더 자주

†To whom correspondence should be addressed.

E-mail: hjkoo@seoultech.ac.kr

‡이 논문은 서울과학기술대학교 김래현 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다. This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

충돌하게 된다. 그 결과로 입자들은 높은 온도 영역에서 낮은 온도 영역으로 이동하게 된다. 입자의 열영동은 주로 기체 매질에 분산된 고체 입자, 즉 에어로졸에서 주로 관찰되는 현상이나, 액체 매질에 분산된 고체 입자, 즉 현탁액에서도 일어난다. 온도 구배가 있는 환경에서 열영동 효과를 고려한 입자의 이동현상을 설명하는 식은 아래와 같다.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \cdot (D \nabla C + D_T C (1 - C) \nabla T) \quad (1)$$

C 는 입자의 농도이며, T 는 온도이다. D 와 D_T 는 각각 일반 확산 계수와 열영동과 관련한 열확산계수이다. 오른쪽 첫번째 항은 농도 구배에 의한 확산을, 두번째 항은 온도 구배에 의한 열영동 현상을 나타낸다. 위 식 (1)에서 보듯이 열영동 현상은 온도 구배의 가파르기인 ∇T 와 열확산계수 D_T 에 의해 결정된다. D_T 는 입자의 크기뿐만 아니라 입자의 화학조성, 열전도도, 열흡수도 등에 영향을 받기 때문에, 동일한 크기나 분자량을 갖는 입자의 분리나 이동 제어에 열영동을 적용할 수 있다.

열영동 현상은 주로 밀리미터 스케일 이하에서 의미있게 관찰된다. 이 때문에 마이크로 시스템에서 보다 효과적으로 활용할 수 있다. 본 논문에서는 미세유체 채널 내에 백금 와이어를 삽입하고 Joule heating을 이용해 온도 구배를 형성한 후, 그에 따른 입자의 열영동 현상에 대해 논의한다. 먼저, 흐름이 없는 비유동 환경에서 열원인 백금 와이어에 가해지는 전압에 따른 폴리스티렌 마이크로 입자의 열영동 거동을 관찰한다. 다음은 유사한 조건에서 금 나노 입자의 열영동 거동을 관찰하고 비교한다. 마지막으로 미세유체 채널을 따라 흐르는 현탁액에서 열영동 현상을 구현하고, 이를 기반으로 현탁액의 흐름을 제어할 수 있는 “열영동 밸브”에 대해 논의한다.

2. 실험방법

입자 현탁액이 흐르지 않는 미세유체 채널 내에서 열영동을 관찰하기 위해 Fig. 1과 같은 셋업을 구성하였다. 미세유체 채널 내부에 Joule heating 현상을 이용하여 국소적인 온도구배를 형성하고 그에

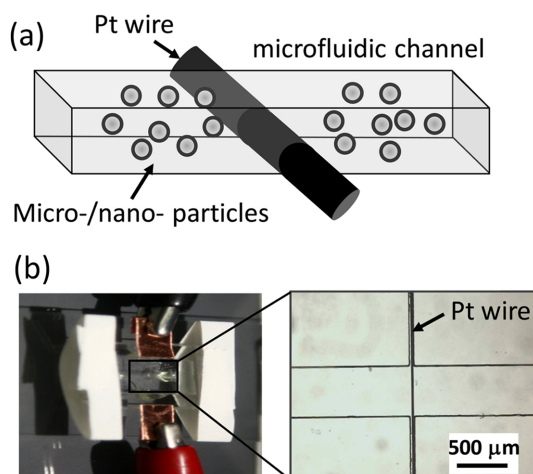


Fig. 1. (a) A schematic of the microfluidic set-up for thermophoresis observation. (b) The top-view image of the microfluidic channel used for the experiment before introducing the colloidal suspension.

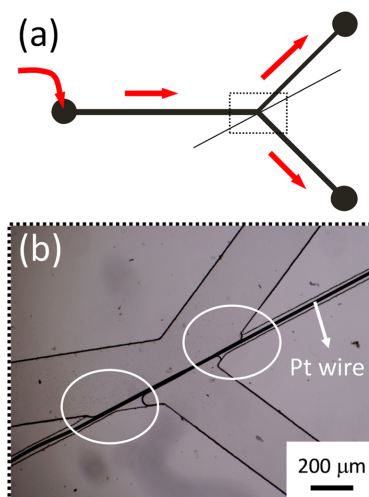


Fig. 2. (a) Schematic image of the microfluidic channel design with the embedded Pt wire. The arrows indicate the direction of the flow. (b) The optical image of the area marked by the dotted rectangle in (a). Scale bar represents 200 μm . The white circles indicate the cured epoxy for fixing the Pt wire.

따른 입자의 거동을 관찰하기 위하여, 백금 와이어(Sigma-Aldrich, 99.99%, diameter = 25 μm)가 채널 중앙을 수직으로 관통하도록 설치하였다[10].

입자 현탁액이 미세유체 채널을 따라 흐르는 유동(fluidic) 시스템에서 열영동에 의한 입자의 이동을 구현하기 위하여 Fig. 2와 같은 미세유체 채널 소자를 제작하였다. 하나의 주입구(inlet)를 통해 공급되는 입자 현탁액은 Y모양 채널을 따라 흘러 두 개의 배출구(outlet)로 나가기 된다. Fig. 2에서 보듯이 두 개의 채널로 갈라지는 지점에서 하나의 채널 입구에 백금 와이어를 가로질러 설치하였으며, 백금 와이어에 전압을 가하여 채널 입구 영역에 온도 구배를 형성하였다.

입자 현탁액의 흐름이 있는 경우와 없는 경우 모두, 백금 와이어의 양쪽 끝은 전원 공급 장치와의 접촉을 좋게 하기 위해 구리테이프를 접합한 후, 직류 전원과 연결하였다. 전원은 Keithley 2602 (Keithley Instruments Inc., USA)를 이용하여 공급하였으며, 필요시 동일장비에서 전류를 측정하였다. 폴리스티렌 입자 현탁액은 Interfacial Dynamics Corp.에서 구입하였으며, 입자의 지름은 $\sim 1 \mu\text{m}$ 이다. 금 나노 입자는 HAuCl_4 를 sodium citrate와 tannic acid로 환원하여 합성하였으며 결과적인 나노입자의 크기는 $\sim 22 \text{ nm}$ 였다[11]. 폴리스티렌 마이크로 입자와 금 나노입자는 모두 물에 분산된 현탁액 상태로 사용하였다. 열영동에 의한 입자의 이동은 광학현미경(Olympus BX-61)을 이용하여 관찰하였다.

미세유체 채널은 기존의 발표된 논문에서 설명된 soft lithography 기술을 이용하여 제작하였다[12]. 채널 몰드를 제작하기 위해 실리콘 웨이퍼 위에 SU-8 2050 photoresist (MicroChem. Inc.)를 스핀 코팅 하였다. Hot plate 위에서 soft-baking을 거친 photoresist 필름 위에 photomask를 얹고 UV 빛을 조사(Model B-100A, BLAK-RAY)하여 선택적 경화를 한다. Post-baking을 거친 후, development (SU-8 developer solution, MicroChem, Inc.) 과정을 거쳐 채널 몰드를 완성하였다. 몰드에 poly(dimethylsiloxane) (PDMS, Sylgard 184, Dow Corning)을 붓고 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 90분간 curing하였다. 패터닝 PDMS

를 떼어낸 후, 튜브를 연결하기 위한 구멍을 뚫고 플라즈마(Model PDC-32G, Harrick Plasma)를 이용하여 유리 기판에 영구적으로 부착시켜 미세유체 채널을 완성하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1의 셋업에서 백금 와이어에 가해지는 전압에 따른 입자의 거동을 관찰하였다(Fig. 3). 백금에 가해지는 전압이 2 V까지 증가할수록 입자가 백금으로부터 밀려나가는 거리가 증가하는 것을 볼 수 있다. 와이어에 전압이 가해지면서 Joule heating에 의해 와이어 주변의 온도가 상승하고, 이에 따라 열영동 현상에 의해 입자가 높은 온도 영역에서 낮은 온도 영역으로 이동한 것으로 보여진다. 2 V 이상의 전압을 가할 경우 백금 와이어 주변에 기포가 발생하는 것을 관찰할 수 있었다. 이로 보아 2 V 이상의 전압에서는 와이어 주변의 온도가 국소적으로 100 °C 이상으로 상승하여 물이 끓기 시작하는 것으로 추정된다.

백금 와이어의 온도를 예측하기 위하여, Callendar-van Dusen 식을 적용하였다[13]. Callendar-van Dusen식은 온도와 백금 저항 사이의 관계를 설명하며, 근사식은 아래와 같다.

$$R(T) \approx R(0) (1 + \alpha T) \quad (2)$$

$R(T)$ 는 T °C에서 백금의 저항이며, α 는 상수로 약 0.004 °C⁻¹의 값을 가진다. 위 식을 정리하면 온도 증가(ΔT)에 대한 아래의 식을 얻을 수 있다.

$$\Delta T = \frac{R(T + \Delta T) - R(T)}{\alpha R(0)} \quad (3)$$

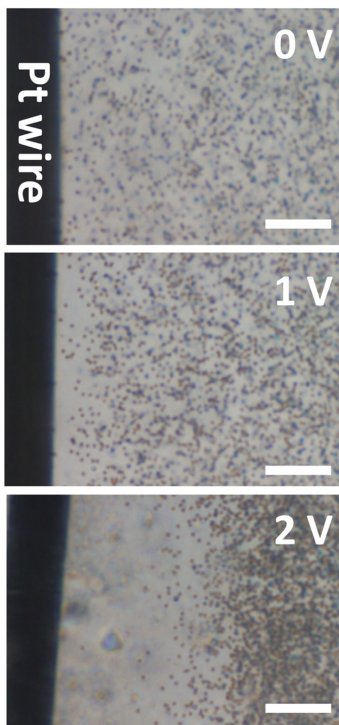


Fig. 3. Optical microscope images of the latex particles near the Pt wire under different applied voltages. The images were taken 1 min after the bias application. Scale bars = 100 μ m.

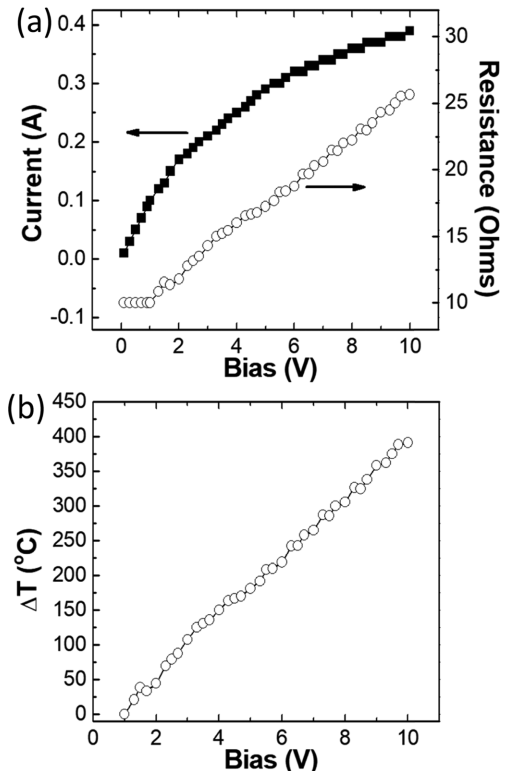


Fig. 4. (a) The measured current through the Pt wire embedded in the microfluidic setup and the calculated resistance. (b) The temperature increase expected by Joule heating of Pt wire. The values were calculated based on Callendar-Van Dusen equation.

식 (3)을 관찰된 결과에 적용해보기 위해, 백금와이어에 가해지는 전압에 따른 전류를 측정하고 그에 따른 저항 값을 계산하였다(Fig. 4(a)). 1 V 이하에서 저항은 일정하게 10 Ω 의 값을 보이므로, $R(0)$ 값을 10 Ω 으로 가정하여 식 (3)에 대입한 결과, Fig. 4(b)의 전압에 따른 온도 증가 그래프(ΔT)를 얻을 수 있었다. 이 그래프에 따르면, 2 V와 3 V에서 각각 50 °C와 100 °C의 온도 증가가 있었을 것으로 예상된다. 실험 온도 조건이 약 20 °C 임을 감안하면 2~3V 사이에서 물이 끓는 온도인 100 °C 도달하게 되는데, 이는 앞서 기포가 관찰된 전압 조건과 일치함을 알 수 있다. 이처럼 Callendar-van Dusen 식을 이용하여 본 열영동 셋업의 백금 와이어 주변 온도를 합리적으로 계산할 수 있다.

미세유체 시스템에서 백금 와이어를 이용한 열영동의 보편적인 적용성을 시험해보기 위하여 폴리스티렌 현탁액과는 입자의 크기와 조성이 다른 금 나노입자 현탁액을 이용하고 입자의 거동을 관찰하였다(Fig. 5). 본 실험에 사용된 금 나노입자의 크기는 약 22 nm이며, 청색-녹색 계열의 가시광선을 흡수하기 때문에 현탁액이 붉은 색을 띈다. Fig. 5(b)에서 보듯이 백금 와이어에 전압을 가함에 따라 백금 주변 영역에 현탁액의 색이 점점 묻어지는 것을 볼 수 있다. Fig. 5(c)는 이미지 분석 프로그램(ImageJ)을 이용해 색의 진하기로부터 나노입자의 분포를 간접적으로 파악한 결과이다. 1.5 V의 전압을 가함에 따라 백금 와이어의 표면인 $\pm 12.5 \mu$ m 부터 약 100 μ m 까지 와이어 주변의 나노입자의 농도가 감소하였음을 확인할 수 있다. 이는 폴리스티렌 현탁액을 이용한 실험 결과와 유사하다. 입자의 크기에 따라 열영동 효과가 어떻게 달라지는지에 대해서는 여전

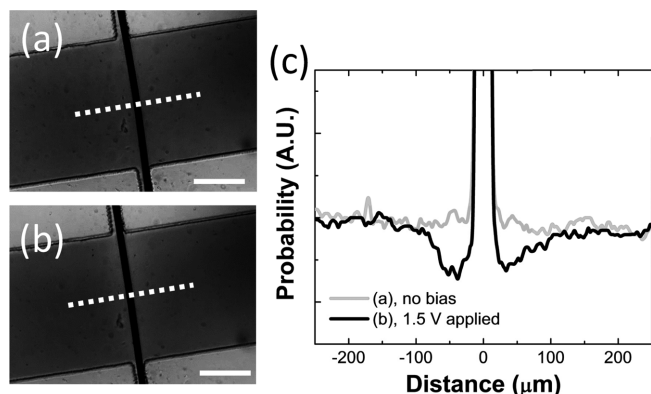


Fig. 5. Top-view images of the channel filled with the gold nanoparticle suspension (a) before and (b) after 1.5 V bias to the Pt wire. The image (b) was taken 1 min after the bias application. (c) The gold nanoparticle distribution along the white dotted lines in (a) and (b). Scale bars = 200 μm .

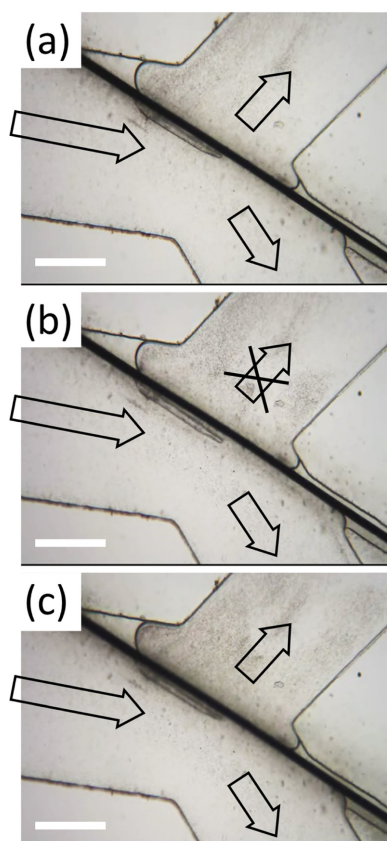


Fig. 6. Flow of latex particle suspension in the microfluidic channel in Fig. 2: (a) before and (b) after 6.5 V bias application to Pt wire for Joule heating. (c) The suspension flow is resumed when the bias is removed. The suspension flow rate is 0.5 $\mu\text{L}/\text{min}$. The channel width and height are $\sim 500 \mu\text{m}$ and $\sim 35 \mu\text{m}$, respectively. Scale bars = 200 μm .

히 논쟁의 여지가 있다. Duhr와 Braun가 발표한 연구 결과에 따르면 열영동 상수는 입자의 크기에 선형 비례하였다[14]. 그러나, Braibanti 연구팀은 콜로이드 입자의 표면이 계면활성제 흡착 등에 의해 “표준상태”로 유지된다면(standardized) 열영동 효과는 입자의 크기와 무관하게 나타남을 보였다[15]. 본 실험에서 사용된 두 가지

Table 1. Operation of thermophoretic valve at different bias applications. O and X indicate whether the thermophoretic valve efficiently stops the flow or not

Bias (V)	Thermophoretic valve	Bias (V)	Thermophoretic valve
0.5	×	5	○
1	×	5.5	○
2	×	6	○
2.5	×	6.5	○
3.5	×	7	○

입자는 그 크기가 약 50배 정도 차이가 나지만 조성이 다르기 때문에, 입자의 크기 및 조성이 열영동에 미치는 영향을 더욱 정확하게 파악하기 위해서는 향후 보다 다양한 종류의 입자를 이용한 연구가 수행되어야 할 것이다.

Fig. 6은 폴리스티렌 입자 현탁액을 주입한 후, 백금 와이어에 전압(6.5 V)을 가했을 때 일어나는 결과를 보여준다. 현탁액의 흐름이 있는 조건에서는 최대 7 V까지 전압을 가해도 물이 끓거나 기포가 생성되는 현상이 일어나지 않았다. 이는 현탁액의 흐름에 의해 백금 와이어에서 발생하는 열이 지속적으로 하류부로 전달되어, 동일 전압에서 유체의 흐름이 없는 경우 보다 온도가 낮기 때문이다. 전압을 가하기 전에는 현탁액이 양쪽 하류부 채널로 모두 원활하게 잘 흐르지만(Fig. 6(a)), 전압을 가함과 동시에 백금 와이어가 설치된 쪽의 채널로는 입자의 이동과 현탁액의 흐름이 멈추고, 그에 따라 반대쪽 채널로 현탁액이 더욱 빠른 속도로 흐르는 것을 관찰할 수 있었다(Fig. 6(b)). 백금 와이어에 가해지는 전압을 제거하는 순간, 많은 수의 입자가 백금 와이어 주변에서부터 다시 움직이기 시작하면서 양쪽 채널로 원활하게 현탁액이 흐르기 시작하였다(Fig. 6(c)).

Fig. 6에서 백금 와이어에 가해지는 전압에 따라 미세유체 채널 내 현탁액 흐름이 제어되는 메커니즘은 Fig. 7에서 보듯이 입자의 열영동 현상으로 설명할 수 있다. 백금 와이어에 전압이 가해짐과 동시에 와이어 주변의 온도가 상승하고 그에 따라 폴리스티렌 입자가 와이어로부터 밀려나 위, 아래 채널 벽에 모이게 된다. 채널의 높이가 충분히 낮을 경우, 열영동에서 의해 밀려나 쌓인 입자가 채널을 막아 현탁액의 흐름을 차단하여 결과적으로 열영동 밸브(thermophoretic valve) 기능을 할 수 있게 된다. Fig. 6의 미세유체 채널에서(채널 높이 = 35 μm) 전압에 따른 현탁액의 흐름 제어 가능 여부를 관찰한 결과, 5 V 이상의 전압에서 열영동 밸브 현상을 관찰할 수 있었다(Table 1). 채널의 높이를 50 μm 이상으로 증가시키면 백금 와이어에 전압을 7 V까지 증가하더라도 열영동 밸브 현상을 관찰할 수 없었는데, 이는 우리의 예상 메커니즘이 타당하다는 것을 뒷받침해주는 결과이다. 이러한 열영동 밸브 현상은 채널의 높이 외에도, 현탁액의 유속, 입자의 크기 및 농도, 백금 와이어의 개수 및 굵기 등에 의해 달라질 것으로 예상된다.

4. 결 론

본 논문에서는 미세유체 채널에서 마이크로 입자 및 나노 입자의 열영동 현상을 관찰하고 이를 미세유체 흐름 제어에 활용하였다. 열영동에 필요한 온도구배를 형성하기 위하여, 미세유체 채널내에 백금 마이크로 와이어를 설치하고 전압을 가할 때 열이 발생하는

Joule heating 현상을 이용하였다. 먼저 흐름이 없는 비유동 미세유체 채널 내에서 전압에 따른 입자의 열영동 현상을 관찰한 결과, 예상대로 전압의 크기에 비례하여 열영동에 의한 입자의 이동이 더욱 크게 나타남을 확인하였다. Callendar-van Dusen 식을 이용해 백금 와이어 주변의 온도를 간접적으로 예측하였으며, 전압에 비례하여 주변 온도가 상승함을 확인하였다. 마지막으로, 유체의 흐름이 있는 유동 미세유체 채널에서 열영동 현상을 관찰하였다. Y모양의 미세유체 채널을 제작하고, 두 개의 출구 채널 중 한 채널의 길목에 백금 와이어를 설치하여 전압을 가하였다. 그 결과 백금 와이어가 설치된 출구 채널을 흐르는 현탁액의 흐름이 열영동에 의해 제어되는 “열영동 밸브” 현상을 확인하였다. 본 연구 결과는 미세유체 시스템에서 마이크로/나노입자의 열영동에 대한 기본 정보를 제공하며, 향후 미세유체 시스템에서 입자의 이동을 효과적으로 제어하기 위해 활용될 수 있을 것이다.

감 사

이 연구는 서울과학기술대학교 교내연구비의 지원으로 수행되었습니다.

References

1. Sajeesh, P. and Sen, A. K., “Particle Separation and Sorting in Microfluidic Devices: A Review,” *Microfluidics and Nanofluidics*, **17**(1), 1-52(2014).
2. Wu, D., Qin, J. and Lin, B., “Electrophoretic Separations on Microfluidic Chips,” *Journal of Chromatography A*, **1184**(1-2), 542-559(2008).
3. Ahn, K., Kerbage, C., Hunt, T. P., Westervelt, R. M., Link, D. R. and Weitz, D. A., “Dielectrophoretic Manipulation of Drops for High-speed Microfluidic Sorting Devices,” *Applied Physics Letters*, **88**(2), 024104(2006).
4. Vigolo, D., Rusconi, R., Piazza, R. and Stone, H. A., “A Portable Device for Temperature Control Along Microchannels,” *Lab on a Chip*, **10**(6), 795-798(2010).
5. Duhr, S. and Braun, D., “Why Molecules Move Along a Temperature Gradient,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **103**(52), 19678-19682(2006).
6. Braun, D. and Libchaber, A., “Trapping of DNA by Thermophoretic Depletion and Convection,” *Physical Review Letters*, **89**(18), 188103(2002).
7. Vigolo, D., Rusconi, R., Stone, H. A. and Piazza, R., “Thermophoresis: Microfluidics Characterization and Separation,” *Soft Matter*, **6**(15), 3489-3493(2010).
8. Piazza, R., “Thermophoresis: Moving Particles with Thermal Gradients,” *Soft Matter*, **4**(9), 1740-1744(2008).
9. Piazza, R. and Parola, A., “Thermophoresis in Colloidal Suspensions,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, **20**(15), 153102(2008).
10. Lao, A. I. K., Lee, T. M. H., Hsing, I. M. and Ip, N. Y., “Precise Temperature Control of Microfluidic Chamber for Gas and Liquid Phase Reactions,” *Sensors and Actuators A: Physical*, **84**(1-2), 11-17(2000).
11. Rastogi, V., Melle, S., Calderón, O. G., García, A. A., Marquez, M. and Velev, O. D., “Synthesis of Light-Diffracting Assemblies from Microspheres and Nanoparticles in Droplets on a Superhydrophobic Surface,” *Advanced Materials*, **20**(22), 4263-4268(2008).
12. So, J.-H. and Dickey, M. D., “Inherently Aligned Microfluidic Electrodes Composed of Liquid Metal,” *Lab on a Chip*, **11**(5), 905-911(2011).
13. Comité International des Poids et Mesures, “The International Practical Temperature Scale of 1968,” *Metrologia*, **5**, 35-44(1969).
14. Duhr, S. and Braun, D., “Thermophoretic Depletion Follows Boltzmann Distribution,” *Physical Review Letters*, **96**, 168301(2006).
15. Braibanti, M., Vigolo, D. and Piazza, R., “Does Thermophoretic Mobility Depend on Particle Size?,” *Physical Review Letters*, **100**, 108303(2008).