

## Fabrication of Ceramic-based Passive Mixers for Microfluidic Application by Thick Film Lithography

Jaekyung Choi<sup>\*,\*\*\*</sup>, Young Joon Yoon<sup>\*†</sup>, Jong-woo Lim<sup>\*,\*\*\*</sup>, Hyo Tae Kim<sup>\*</sup>,  
Eun-hae Koo<sup>\*</sup>, Youn-Suk Choi<sup>\*\*</sup>, Jong-Heun Lee<sup>\*\*\*</sup>, and Jong-hee Kim<sup>\*</sup>

<sup>\*</sup>Division of Fusion & Convergence Technology, Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Seoul 153-801, Korea

<sup>\*\*</sup>Kyungwon Tech Inc., Seongnam 436-827, Korea

<sup>\*\*\*</sup>Department of Materials Science & Engineering, Korea University, Seoul 136-701, Korea

(Received October 20, 2008; Accepted November 12, 2008)

### 후막리소그라피를 이용한 세라믹기반의 미세유체소자용 수동형 혼합기의 제조

최재경<sup>\*,\*\*\*</sup> · 윤영준<sup>\*†</sup> · 임종우<sup>\*,\*\*\*</sup> · 김효태<sup>\*</sup> · 구은희<sup>\*</sup> · 최윤석<sup>\*\*</sup> · 이종훈<sup>\*\*\*</sup> · 김종희<sup>\*</sup>

<sup>\*</sup>요업기술원 융복합기술본부 융합기술팀

<sup>\*\*</sup>(주) 경원테크

<sup>\*\*\*</sup>고려대학교 신소재공학과

(2008년 10월 20일 접수 ; 2008년 11월 12일 승인)

#### ABSTRACT

Microfluidic device can be applied in a wide range of chemical and biological technology. In this paper, ceramic-based T-type passive mixers for microfluidic applications were fabricated by LTCC process combined with thick film photolithography. The base ceramic material in thick film was amorphous cordierite ((Mg,Ca)<sub>2</sub>Al<sub>4</sub>Si<sub>5</sub>O<sub>18</sub>) and photoimageable polymers were added to give a photosensitivity. Two types of passive mixer, which showed the channel width of 1.0 mm and 200 μm, respectively, were designed considering mixing efficiency in the channel and their microfluidic properties were discussed in detail.

**Key words :** Ceramic passive mixer, Cordierite, Photoimageable paste, Photolithography, Microfluidics

#### 1. 서 론

MEMS(micro-electro mechanical system) 기술을 기반으로 발전된 미세유체소자(microfluidic) 기술은 화학, 생명공학, 기타 산업 분야로의 응용을 위해서 많은 연구와 발전을 이루었다.<sup>1)</sup> 실리콘 기반의 미세유체소자들은 반도체 공정에서 사용되는 광식각(photolithography) 기술을 통하여 다양한 형태의 미세패턴형성 및 소자들의 고집적화를 가능하게 하였다. 그러나 제조공정상의 고비용, 분석과정에서 발생 가능한 전기적 충격에 대한 취약성 등이 단점으로 나타나고 있다. 이에 대한 대안으로써, 최근 PDMS (polydimethylsiloxan), PMMA(polymethylmethacrylate)와 같은 고분자를 주요 재료로 하는 소자의 제조 및 이에 관한 특성 연구가 진행되고 있으나, 고분자 재료의 가장 큰 취약점인 낮은 내화특성과 내열성이 단점으로 지적되고 있으며, 타 기능 소재와의 이종접합 및 집적화가 어렵다는 문제점을 가지고 있다.

본 연구에서는 앞서 언급된 기존 재료들이 가지는 단점을 보완하고자 우수한 열적, 전기적, 화학적 안정성을 보이는 세라믹 재료를 이용한 미세유체소자를 제작하고자 하였다. 또한 LTCC (low temperature co-fired ceramic)에 기반한 후막 리소그라피 기술을 도입함으로써 향후 3차원 집적화가 가능한 공정호환성을 확보하고자 하였다. 이러한 LTCC 재료 및 공정을 이용하게 되면 미세유체기반의 다양한 기능을 갖는 소자들, 즉 마이크로 혼합기(micro-mixer), 마이크로 펌프(micro-pump), 마이크로 밸브(micro-valve), 트랜스듀서 (transducer) 등을 하나의 소자에 집적 가능케 함으로써, LoC 구성의 플랫폼 역할을 할 수 있을 것으로 기대된다.<sup>2,3)</sup>

세라믹 기반의 미세유체소자에 대한 기본적인 제작 및 특성평가를 통하여 그 응용가능성을 타진하고자 본 연구에서는 코디에라이트(cordierite, (Mg,Ca)<sub>2</sub>Al<sub>4</sub>Si<sub>5</sub>O<sub>18</sub>)에 감광성 유기물을 혼합한 페이스트를 후막의 형태로 도포한 뒤, 광식각(photolithography) 기술을 이용하여 미세유체용 수동 혼합기(passive mixer)를 제조하였다. 이러한 수동혼합기는 미세유체의 흐름을 제어하는 소자의 기본 구성요소로서, 새롭게 도입되는 세라믹 공정을 통해 제조되는 미세유체

<sup>†</sup>Corresponding author : Young Joon Yoon  
E-mail : yjyoon@kicet.re.kr  
Tel : +82-2-3282-7854 Fax : +82-2-3282-7838

소자 특성을 평가하고자 하였다. 또한 1 mm와 200  $\mu\text{m}$ 의 채널 선폴을 갖는 두 종류의 T-type의 수동형 미세혼합기를 제조하여, 선폴 및 소자의 형상에 따른 혼합효율을 정량적으로 비교, 평가하여 그 특성을 고찰하였다.

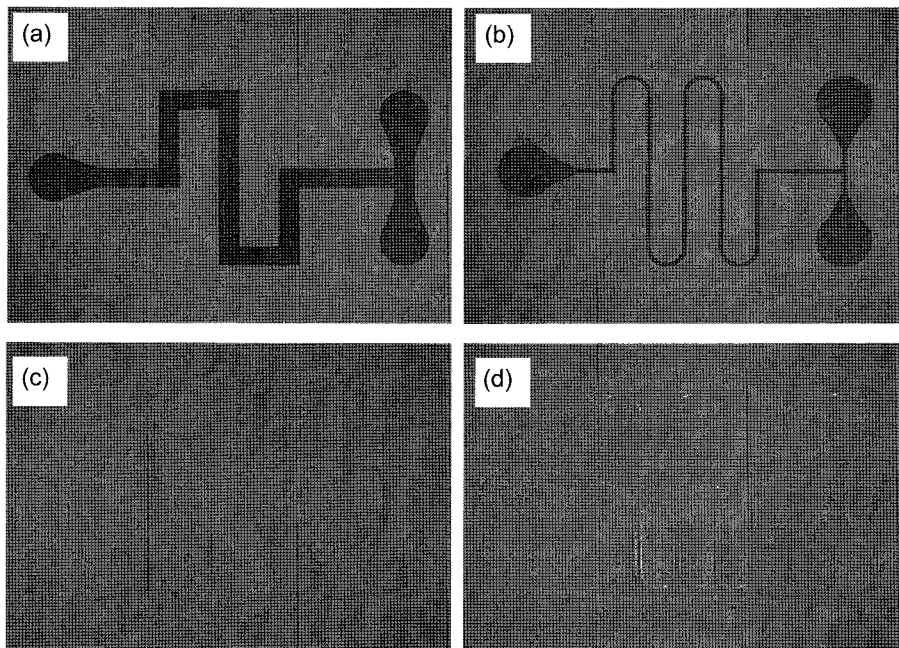
## 2. 실험 방법

본 실험에서 사용된 세라믹 재료는  $(\text{Mg}, \text{Ca})_2\text{Al}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$  조성을 갖는 비정질 코디어라이트 분말으로써 평균입도 2~3  $\mu\text{m}$ 를 보이고 있으며, 800°C 정도의 비교적 낮은 소결 온도를 갖는 LTCC 소재이다. 굴절을 1.54를 보이는 본 재료를 원료로 비감광성의 기판과 감광성 유기물이 첨가된 페이스트를 제조하였고, 후막 광식각 공정을 통하여 소자를 제작하였다. 먼저, 실험에 사용된 기판은 비정질 코디어라이트 분말만을 이용하여 두께 700~800  $\mu\text{m}$  후막의 형태로 준비되었다.

감광성 페이스트의 제조는 기판과 동일한 비정질 코디어라이트 분말과 감광성 유기물이 혼합된 상태으로써, 자외선 광반응을 발생시키는 광개시제, 형성된 후막의 소결 전 강도와 광반응 후 소자의 형태를 유지시킬 수 있는 바인더폴리머, 광반응에 의하여 폴리머화 되어 현상간 소자의 식각을 방지하는 모노머, 광반응성을 촉진시키는 광증감제, 자외선흡수를 돕는 적색의 색소 등이 감광성 물질로 첨가되었다. 준비된 감광성 페이스트를 제조된 기판에 두께 100  $\mu\text{m}$ , 30×35 mm 크기의 금속판형 마스크를 이용하여 원하는 형태로 도포하고 건조하여 시료를 준비하였다.

건조된 시료는 자외선 노광기(CA-60TS, shinu MST)를 이용하여 노광을 실시하였고, diethanolamine 을 0.75 mol%로 희석한 현상액을 이용하여 자외선이 조사되지 않는 부분을 식각함으로써 미세 채널을 갖는 시료의 층을 형성하였다. 이 때, 채널 선폴이 1 mm, 200  $\mu\text{m}$ 를 갖는 두가지 종류의 수동형 혼합기 제작을 위하여 두 종류의 UV 마스크가 이용되었다. 식각을 마친 시료는 800°C, 1시간의 소결과정을 거쳐서 최종적인 수동형 혼합기로 완성된다.

제조된 소자에 유체의 흐름과 관측이 가능하도록 소자 크기의 투명한 PDMS를 사각형태로 절단하여 제작된 수동형 혼합기 소결체 위에 접합시켰다. PDMS와 세라믹 기판과의 접합은 플라즈마 에칭기를 이용하여 PDMS 표면을 소수성에서 친수성으로 개질함으로써 가능하게 된다.<sup>4)</sup> 수동형 혼합기의 유체 혼합특성평가는 형광특성을 가지는 유체(fluorescein, Aldrich, F2456)와 초순수를 제조된 시료의 채널로 주입하여 형광세기를 관찰하는 과정으로 실험에 사용된 장비는 유체주입량 및 속도의 조절이 가능한 미세펌프(Harvard, pump 11 pico plus)와 유리주사기(Hamilton, 1700Series GASRIGHT syringe, 500  $\mu\text{l}$ )를 이용, 유체를 주입하였고 형광검출이 가능한 현미경(Zeiss fluorescent microscope)으로 유체가 주입되는 소자의 도입부(inlet), 중간(middle), 배출부(outlet) 영역에서의 형광강도를 관찰하였다. 이렇게 관찰된 결과는 이미지분석용 소프트웨어(imagej, Research Services Branch of the National Institute of Mental Health)를 이용하여 각 영역의 형광세기를 정량화함으로써 혼합효율을 도출하였다.



**Fig. 1.** Optical microscope (OM) images of micro-patterns on cordierite thick film with different channel width of 1 mm and 200  $\mu\text{m}$ . (a) and (b) showed the micro-patterns after photolithography and final products after sintering process were shown in (c) and (d), respectively.

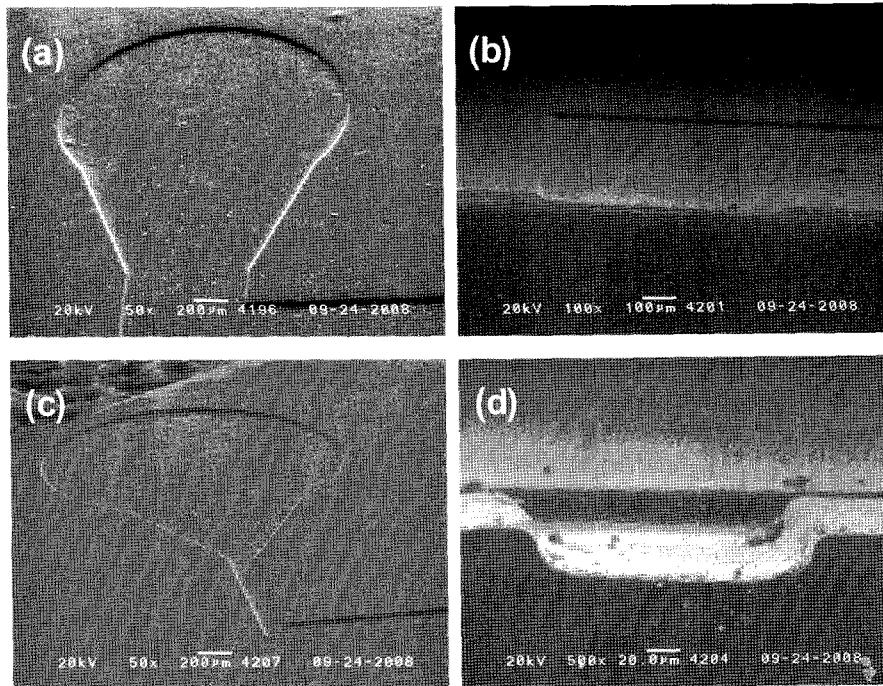


Fig. 2. Scanning electron microscope (SEM) images of microcavity and microchannel formed on codierite thick film after sintering process at 800°C with different channel width of 1mm ((a), (b)) and 200 µm ((c) and (d)).

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 1(a)와 (b)는 감광성 페이스트를 재료로 하는 선폭 1 mm와 200 µm의 수동형 혼합기 소결 전 광학현미경사진으로써, 세라믹을 소재로 사용하는 미세유체 소자의 제작 가능성을 보여주고 있다. 사진에서 나타나 있는 것처럼 소자의 채널 전반에 걸쳐서 광식각 공정을 통해 얻어진 미세채널 형상이 구현된 것을 확인할 수 있으며, 이러한 미세 패턴의 해상도 및 선명도는 노광과정에서의 자외선의 강도 및 시간에 따라서 좌우된다. 즉, 노광의 세기가 높을 경우, 현상과정 중에 광반응을 받지 않는 소자의 채널부분이 과경화로 인한 형상이 이루어지지 않으며 너무 낮을 경우, 현상과정에서 소자의 형태가 무너질 수 있다. 따라서 광식각 과정중의 노광 및 현상 조건은 미세 패턴의 형상이나 크기, 그리고 도포된 페이스트의 두께 및 점도에 의해서 결정되며 실험을 통한 최적의 조건 도출이 필요하다. 본 논문에서 제시되지 않았지만 세라믹 재료 및 후막 광식각공정을 통해서 얻어지는 최소 채널의 선폭은 20 µm 정도인 것으로 확인되었다. Fig. 1(c), (d)는 800°C에서 소결을 거친 소자의 광학현미경 형상으로, 고온의 소결과정에서도 미세채널의 변형이나 표면의 균열 등이 없는 깨끗한 상태의 소결체 소자가 만들어진 것을 보여주고 있다.

Fig. 2는 소결된 소자의 전자현미경 사진으로 소결과정에서 발생하는 소자의 수축에 따른 채널 선폭의 변화를

미세하게 관찰하기 위하여 분석이 진행되었다. 소결 후 소자의 전체적인 크기는 가로, 세로 방향으로 약 20% 정도의 수축이 발생하였고, 두께 방향으로는 약 15% 정도의 수축이 발생되었으나 관찰된 각 소자의 채널 폭은 큰 변화가 없음을 Fig. 2(b)와 (d)를 통하여 알 수 있었다.

Fig. 3은 1 mm와 200 µm 채널 선폭에 차이가 있는 두 가지 수동형 혼합기에서의 형광유체 및 초순수의 흐름을 형광현미경으로 관찰한 결과로, 유체의 흐름을 확보하기 위하여 소결이 끝난 소자의 표면에 플라즈마 처리가 된 PDMS를 상판으로 부착한 뒤에 실험이 이루어졌다.<sup>4)</sup> 특성평가는 미세펌프를 이용하여 유체 도입부 양단에 초순수와 형광수용액을 3 mm/s의 유속으로 각각 주입하여 얻어진 것으로서, 각각의 유체의 주입 후에 흐름의 안정화가 이루어진 상태에서 얻어진 결과이다. 도입부에서 배출부 방향으로 유체의 형광세기 변화를 보면 1 mm의 채널을 갖는 혼합기에서 유체간 계면의 형광세기 차이가 200 µm의 채널을 갖는 혼합기에 비해서 명확한 것을 확인할 수 있으며, 이는 혼합효율을 수치적으로 환산된 결과를 토대로 정량적으로 비교하여 검증할 수 있었다.

Fig. 4는 수동형 혼합기의 유체 도입부, 중간, 배출부에서의 혼합효율의 변화를 관찰하기 위해서 형광강도의 변화를 그래프로 나타낸 결과이다. 도식화된 결과에서의 x 축은 채널 선폭(1 mm 및 200 µm)을 픽셀단위로 환산한 것이며, y 축은 픽셀에서 얻어지는 형광의 세기를 의미한다. 이 때, 형광의 세기가 가장 높은 값을 1로, 가장 낮은

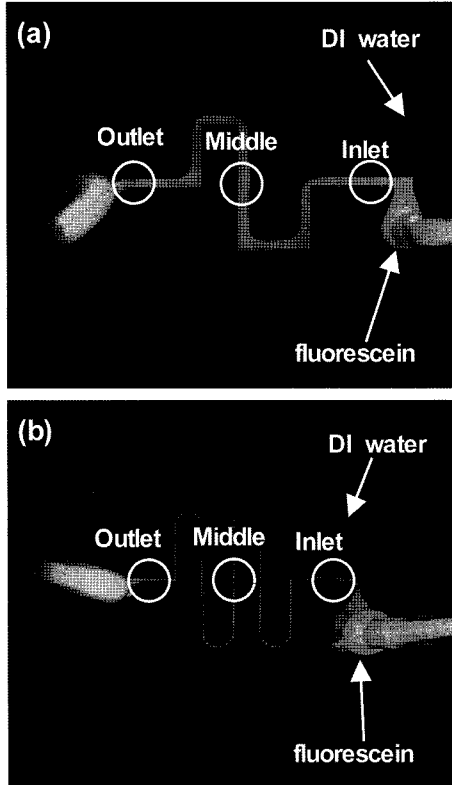


Fig. 3. Fluorescence Microscope images obtained from two different passive mixers with channel width of 1 mm (a) and 200 μm (b) after injection of microfluids.

값을 0으로 하여 각 값을 변환하여 나타내었다. Fig. 4(a)에서 제시되는 1 mm 채널의 미세혼합기의 혼합효율 결과에서는 유체의 주입구에서 배출구까지 측정위치에 상관없이 형광의 세기가 수치적으로 양분화된 것을 확인할 수 있다. 이러한 결과는 두 유체간의 혼합 없이 층류를 이루며 배출구까지 이동한 것으로 만약 두 유체간 확산에 의한 혼합이 완벽히 이루어졌다면 형광의 세기가 y 축의 평균값인 0.5에 가까워지는 결과를 볼 수 있을 것이다. Fig. 4(b)에 제시되는 200 μm 혼합기의 경우 유체의 도입부에서 배출부까지 유체가 이동함에 따라 결과 그래프의 기울기가 점차 작아지는 것을 볼 수 있고 이러한 결과는 두 유체간의 혼합이 진행되고 있는 것으로 판단할 수 있다. 위의 결과를 바탕으로 0.5의 형광세기를 완벽한 혼합이라고 하였을 때, 식 (1)을 이용하여 각 측정 위치별 혼합효율을 계산할 수 있었다.<sup>5,6)</sup>

$$\eta = \left( 1 - \frac{\int_0^1 |c - c_\infty| dA}{\int_0^1 |c_0 - c_\infty| dA} \right) \times 100\% \quad (1)$$

본 수식에서  $\eta$ 는 혼합효율을 의미하며  $c$ 는 측정된 형광의 세기,  $c_0$ 는 혼합이 발생되지 않은 상태를 의미하므로 수치적으로는 0으로 표시될 수 있으며,  $c_\infty$ 는 완전 혼합을 의미하게 되므로 0.5의 값을 가지게 된다.

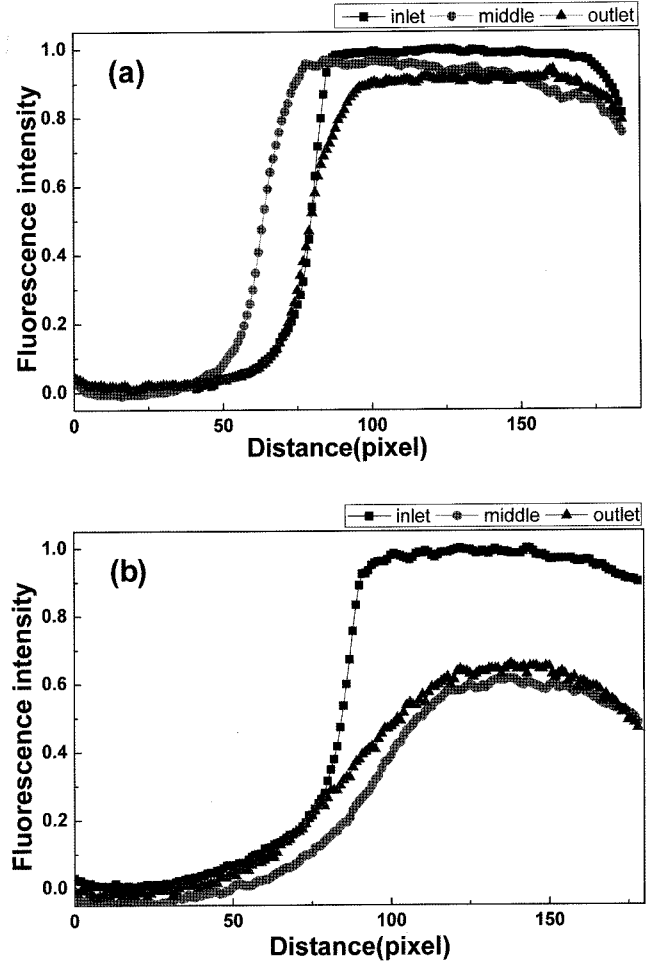


Fig. 4. Change of fluorescence intensity at inlet, mid. and outlet in microchannels with different channel width of (a) 1 mm and (b) 200 μm.

Table 1은 각 측정부분인 도입부, 중간, 배출부에서의 측정된 혼합효율을 나타낸 것으로 1 mm의 채널 폭을 갖는 소자에서는 배출부에서 약 20%의 혼합효율을 보이고, 200 μm의 채널 폭을 갖는 소자에서는 약 50%의 혼합효율을 나타내고 있다. 이는 소자의 형태에 따라 혼합의 특성차이가 나타남을 보여주는 결과이다. 이는 미세영역에서 각 유체 간의 확산이 혼합에 가장 큰 영향을 주는 요인이라는 점에서 채널의 폭이 상대적으로 짧은 소자에서 동일한 유속으로 유체를 주입할 경우, 유체가 주입되는 동안 상대적으로 짧은 확산거리를 갖기에 더 높은 혼합효율을 보이는 것이다.<sup>7)</sup>

Table 1. Calculated Mixing Efficiency of Passive Mixers with Different Channel Width of 1.0 mm and 200 μm

Channel width	Inlet (%)	Middle (%)	Outlet (%)
1.0 mm	9.21	16.83	19.86
200 μm	13.12	43.49	50.79

이러한 경향은 유체의 확산에 의해서 유체거동이 지배되는 수동형 미세혼합기에서 나타나는 일반적인 현상으로써, 본 논문에서 제시된 수동형 혼합기의 경우에서도 그 현상이 유사하게 적용되고 있는 것을 확인할 수 있었다. 이러한 결과를 토대로 세라믹 소재의 광식각 공정기술로 설계된 수동형 혼합기의 경우, 미세유체의 흐름을 제어하고 활용하는 기능소자 제작에 활용될 수 있는 가능성을 확인할 수 있었다. 또한 LTCC 소재 및 공정이 적용되어 이러한 미세유체 소자가 제조되었다는 점을 감안할 때, 추가적인 이중소자들의 내장화 및 3차원적인 적층을 통한 집적화도 가능하므로 LoC와 같은 미세유체 소자의 적용 가능성이 매우 유망할 것으로 판단된다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 세라믹을 기반으로 하는 미세유체소자의 제작을 위하여 LTCC 및 광식각공정을 이용한 수동형 혼합기에 대한 연구가 진행되었다. 세라믹 재료인 비정질 코디어라이트 분말과 감광성유기물을 혼합한 페이스트를 준비하여 도포한 뒤, 자외선을 이용한 광식각 공정으로 채널의 폭이 1 mm와 200  $\mu\text{m}$ 를 갖는 수동형 혼합기 소자를 제작할 수 있었다. 특히 800°C 소결과정에서도 일부 수축은 관찰되었으나 채널의 변형이나 크랙 등과 같은 결함은 발생되지 않았다. 또한 미세유체 혼합실험을 통하여 채널의 선포이 유체의 흐름을 지배하게 되는 전형적인 확

산형 T-type 수동형 혼합기의 특성을 확인할 수 있었다.

#### REFERENCES

1. K. S. Yun and E. Yoon, "Microfluidic Components and Bioreactors for Miniaturized Bio-chip Applications," *Biotechnology and Bioprocess Eng.*, **9** [2] 86-92 (2004).
2. L.J.Golonka, "Technology and Applications of Low Temperature Cofired Ceramic (LTCC) Based Sensors and Microsystems," *Bulletin of the Polish Academy of Sciences Technical Science*, **54** [2] 221-31 (2006).
3. P. Abgrall and A. M. Gue, "Lab-on-chip Technologies: Making a Microfluidic Network and Coupling it into a Complete Microsystem a Review," *J. Micromech. Microeng.*, **17** 15-49 (2007).
4. C. S. Lee, H. W. Shim, J. H. Lee, and J. H. Jung, "Fabrication of Polymeric Microfluidic Chip and its Surface Modification," *Polymer Science and Technology*, **17** [2] 191-206 (2006).
5. L. J. Golonka, H. Roguszczak, T. Zawada, J. Radojewski, I. Grabowska, M. Chudy, A. Dybok, Z. Brzozka, and D. Stadnik, "LTCC Based Microfluidic System with Optical Detection," *Sensor and Actuators B*, **111-112** 396-402 (2005).
6. V. Hessel, H. Lowe, and F. Schonfeld, "Micromixers-a Review on Passive and Active Mixing Principles," *Chemical Engineering Science*, **60** 2479-501 (2005).
7. J. Y. Yoon, G. S. Han, and S. J. Byun, "Numerical Analysis on Mixing Efficiency in a Micro-channel with Varied Geometry," *J. Korea Ind. Eng. Chem.*, **16** [2] 275-81 (2005).