균일 유동 마이크로 반응기의 설계와 검증

박지민* · 이승재** · 김경천†

Design and Evaluation of a Uniform Flow Microreactor

Ji Min Park, Seung Jae Yi and Kyung Chun Kim

Abstract. This paper proposes a design method to provide uniform flow in a microreactor. Uniform momentum approach is adopted with 10 pillars before and after the chamber having a different slope inlet channel. The slope and number of pillars are two factors to make a uniform flow in the microreactor, covering the hexagonal gold layer. The CFD analysis about the designed microreactor is carried out and the velocity vector field measurements are made in the fabricated microreactor by micro PIV technique. The uniformity of microreactor flow was confirmed by both numerical simulation and experimental results.

Key Words: Microreactor(마이크로 반응기), Uniform flow(균일 유동), CFD(전산유체역학), Micro PIV(마이크로 PIV)

1. 서 론

최근 단백질 센서(Immuno-sensors)는 임상분야뿐만 아니라, 화학 및 기계 연구 분야에서도 관심이 증가하고 있다. 특히, 단백질 센서는 전기화학 또는 물리적 센서 시스템과 비교해보았을 때 생물학적 요소에 대한 선택적고감도 특성 때문에 단백질 센서의 장비 설계와 제작 과정에 관한 관심이 증가하고 있다⁽¹⁻³⁾. 표면 플라즈몬 공명(Surface Plasmon Resonance) 기술은 시료의 작은 변화에도 민감하게 반응하는 측정기법 중 하나이며, 화학 및 기계 분야의 연구자들은 피코~나노(pg/ml~ng/ml) 단위의 고감도 범위에서 최적의 상태를 표시 할 수 있는 SPR 측정기법에 대한 연구를 활발하게 진행하고 있다⁽⁴⁾. SPR 측정기법은 광 에너지가 나노 크기의 귀금속 박막 표면에 흡수 되었을 때 입사파와 표면 플라즈몬 파(surface plasmon wave) 사이에서 공명 현상이 일어나는데 이 때 금속 박막 표면에 외부 물질의 흡착 또는 구조적으로 변형되면 굴절률이 변화

하게 된다. 이러한 물질의 변화를 민감하게 감지하는 특성을 광학적으로 측정하는 기법이다.

현재 상업용 SPR 측정기에는 많은 종류가 있으며, 본 연구실에서는 폐쇄회로 (Closed Loop) SPR 분광기(K-MAC Co. Ltd., Korea) 를 이용하여 항원-항체(Antigen-Antibody)의 면역반응 감지에 사용하고 있다. SPR 진단을 위해 SPR 칩의 금 박막에 항체를 고정하고 아래와 같은 과정을 거치게 된다. SPR 칩을 에탄올에 1시간 동안 세척 후, 증류수를 3시간 가량 흘려주고, 단백질 고정을 위해 Prolinker™ 혼합액을 흘려준다. 그리고 마지막으로 항원을 흘려준다. 만약 SPR 칩 세척 과정에서 충분한 유동이 이루어지지 않으면 반응 챔버 내에는 시료의 잔여물이 남게 되며, 이 경우 SPR 측정법의 정확성 및 고민감도를 보장할 수 없다. 따라서 SPR 칩에서 반응 챔버의 균일 유동은 SPR 측정기법의 성능향상을 위한 중요한 과제이다.

Fig. 1은 기존에 사용되던 SPR 칩의 전체적인 개략도와 전산유체 해석 결과에 의한 속도벡터장을 나타낸 그림이다. 마이크로 반응기 챔버와 채널을 실리콘 웨이퍼로 제작하였다. 칩의 크기는 18 mm × 18 mm이며 마이크로 챔버 중심에는 육각 모양의 금 박막이 위치해 있다. 금 박막은 유리 웨이퍼에 50 nm 두께로 증착

†부산대학교 기계공학부

E-mail : kckim@pusan.ac.kr

*, ** 부산대학교 기계공학부 대학원

하였으며 칩의 입구/출구는 마이크로 반응기 챔버의 왼쪽과 오른쪽에 위치해 있다. Fig. 1(a)는 제작된 마이크로반응기와 금 박막이 증착된 유리 웨이퍼에 SPR 칩을 구성하는 그림을 나타낸다. Fig. 1(b)는 기존의 SPR 칩의 벡터장 CFD 해석 결과를 보여준다. 좌측 입구를 통해 들어온 유체는 육각 모양 반응기 챔버에서 중심에는 제트 형태의 유동이 발생되고, 챔버 위, 아래로는 재순환류가 발생되는 것을 확인할 수 있다. Fig. 1(c)는 마이크로 반응기 중심(line (A)-(A'))에서의 속도 분포를 나타낸다. 속도 분포에서 알 수 있듯이 챔버의 위, 아래 부분에서 음의 크기를 가지는 재순환류가 생성되는 것을 확인할 수 있다.

이러한 재순환류의 발생은 SPR 진단 칩의 세척과정 중 챔버를 충분히 세척할 수 없게 하기 때문에 SPR 분광법의 감도 저하를 가져온다. 따라서 SPR 분광법의 감도와 안정성을 보장하기 위해 마이크로 챔버 내에서의 균일유동에 관한 연구는 필수적이다. 본 연구에서는 마이크로 챔버 내에서의 유체 유동의 균일성을 보장하기 위해 운동량 균일성 이론 (momentum uniformity theory) 및 CFD 분석을 통하여 균일 유동 챔버를 설계하였다. 또한 균일 유동을 확인하기 위하여 챔버 내부 속도 벡터장을 마이크로 PIV 측정기법을 통해 측정하였고, 이를 전산해석 결과와 비교하였다.

2. 균일유동을 위한 마이크로 반응기 설계

2.1 마이크로 챔버 형상설계

마이크로 반응기를 설계하기 위한 유동 균일성에 관한 설계는 Commenge등⁽⁵⁾의 연구 팀 논문을 참조하였다. Fig. 2(a)는 입출구 형상 설계이며, 채널에서의 유체속도 분포를 단순화된 Plate의 형상으로 나타내었다. 여기서 N_c 는 Plate에서의 채널 개수를 뜻하고 유체가 입구를 통해 투입되어 각 채널로 분배되는 입출구 통로(Inlet and Outlet Chamber)는 N_c 로 나누어지게 된다. 입구 및 출구를 N_c 로 대칭 하게 나누었을 때 N_c Zone은 동일한 폭을 가지는데 Zone의 폭을 L_c 라 하고 i 번째 Zone에서의 높이를 W_i 로 정의한다. 그리고 각 채널의 폭과 깊이는 동일하다고 가정할 때 채널의 폭을 W_c 라 하고 깊이는 e 라고 한다. Inlet Zone이 시작되는 지점과 Outlet Zone이 끝나는 Zone에서의 높이를 W_l 이라고 하고 끝나는 지점의 높이는 W_m 라 정의한다. 그리고 유동의 균일분배가 이루어질 수 있도록

(a) Schematic of the conventional SPR chip

(b) The velocity vector field by CFD analysis

(c) The velocity profile at the line (A)-(A')

Fig. 1. The conventional SPR chip; (a) Schematic of the SPR chip, (b) The velocity vector field by CFD analysis, (c) The velocity profile at the line (A)-(A').

선형 챔버 관계식을 이용하여 형상을 설계하였다. 유동은 마이크로 반응기에 유체가 균일하게 각 Plate로 분배된다고 할 때 입구로 들어온 유체가 N_c 로 분배되어 채널을 빠져 나온다고 가정한다. 이 때 채널로 분배된 각 Stream들은 입구와 채널, 출구 영역을 지나올 때 압력강하의 합이 같다는 전제에서 계산된다.

$$\Delta P_{plate} = \sum_{i=1}^j \Delta P_{i,inletzone} + \sum_{i=1}^{N_c-1-j} \Delta P_{i,outletzone} \quad (1)$$

식 (1)에서 3개 항목을 압력강하식으로 나타내면 아래와 같다.

$$\Delta P_c = \frac{(12 \times \mu \times L_c \times U_c)}{[e^2 \times (1 - 0.351 \times e/W_c)^2]} \quad (2)$$

(a) Description of chamber zones with corresponding channels ranging from 1 to N_c [5]

(b) Channels of a plate with the different parameters and variables involved in the approximate model for velocity distribution [5]

Fig. 2. Optimal design for flow uniformity in micro reactor.

$$\Delta P_{i,inletzone} = \frac{[12 \times \mu \times L_e \times (N_c - i)]}{[W_i \times e^2 \times (1 - 0.351 \times e/W_i)^2]} \quad (3)$$

$$\Delta P_{i,outletzone} = \Delta P_{N_c-1-i} \quad (4)$$

식 (1)의 W_1 과 W_{nc} 값을 변수로 두고 압력강하값의 합이 가장 일치하는 W_1 과 W_{nc} 의 값을 선정하였다. 채널에서 유체의 균일 분배를 위한 챔버 직선식을 적용하기 위해서 마이크로 반응기에서 Plate의 채널의 수와 길이, 유체의 채널속도 등을 선정해야 한다. 그래서 Plate에 가공하고자 하는 채널의 개수를 11개로 정하고 채널의 길이는 2.0 mm로 정했다. 그리고 각 Stream의 압력강하값이 일정할 때에 W_{nc} 와 W_1 값을 최종 입구 챔버 형상으로 선정하였다.

2.2 마이크로 반응기의 CFD 해석

설계된 마이크로 반응기에 대해 3차원 전산해석을 수행하여 챔버 내부의 유동장을 예측해 보았다. Fig. 3은 마이크로 반응기의 바닥에서 0.25 mm 높이에서의 속도분포를 보여준다. Fig. 3(a)는 전산해석을 통해 얻어진 마이크로 반응기 내부의 속도장의 크기를 색에 따른 속도등고선을 통해 나타내고, 챔버 내 유각형은 SPR 측정을 위해 도포된 금 박막의 위치를 보여준다. 입구와 출구에서 유입된 시료의 속도크기가 가장 크고, 반응기 내부 챔버에서는 속도가 거의 균일한 것을 속도등고선을 통해 확인할 수 있다. Fig. 3(b)는 마이크로 챔버 입구(Fig. 3(a)의 line(i))에서의 속도 분포를 보여준다. 액체시료는 서로 다른 입구/출구 측 벽면과 10개의 기둥으로 인해 11개의 마이크로 채널로 나누어지며, 챔버 입구에서는 재순환류가 발생되지 않는 것을 확인할 수 있다. 또한, 11개의 채널을 통해 챔버로 유입되는 유체가 제트류 형태와 같은 것을 볼 수 있다. 그리고 마이크로 반응기의 중심 높이 (0.25 mm)에서의 액체의 속도 범위는 약 0.032 ~ 0.047 m/s이며, 평균 최대 속도는 약 0.04 m/s 이다. Fig. 3(c)는 금 박막이 증착되어있는, 마이크로 반응기의 중심(Fig. 3(a) line(ii))에서의 속도분포를 보여준다. 마이크로 반응기 중심의 속도 범위는 약 0.021 ~ 0.023 m/s인데, 이는 유입 초기의 제트류 형태의 유동이 점성 확산으로 인해 상당히 균일한 형태의 속도 분포로 변했기 때문인 것을 확인할 수 있다.

3차원 전산해석 수행 결과, 설계된 마이크로 반응기

(a) Flow vector field by CFD analysis

(b) Velocity profile at the inlet of chamber(i)

(c) Velocity profile at the center of deposited gold layer(ii)

Fig. 3. CFD analysis for designed microreactor; (a) flow vector field for CFD analysis, (b) velocity profile at the line (i) and (ii).

에서의 유체유동의 균일성과 안정성을 확인할 수 있다.

2.3 균일 유동 마이크로 반응기와 SPR 칩 제작

마이크로 반응기의 몰드는 미세 기계 가공을 통해 제작하고, 제작된 몰드와 PDMS를 이용하여 마이크로 반응기를 제작하였다. PDMS와 경화제는 10:1의 비율로 혼합하고, 혼합액이 담긴 용기를 진공 오븐에 넣은 후 진공 펌프로 진공 오븐 내부의 압력을 낮추면서 혼합액이 담긴 용기의 미세 기포를 제거하였다. 이 후 기포가 제거된 혼합액을 제작된 마이크로 반응기 몰드에 붓고 마이크로 오븐에서 80°C에서 경화시킨다. 경화가 완료된 마이크로 반응기 몰드에서 PDMS를 떼어낸 뒤 마이크로 반응기 크기로 자른다. 완성된 PDMS 마이크로 반응기는 MEMS 공정에 의해 금 박막이 도포된 유리 웨이퍼와 접합한다. 칩의 크기는 18 mm×18 mm이며, 육각형 모양의 금 박막은 E-beam 증착법을 이용하여 50 nm 두께로 증착하였다. Fig. 4는 제작된 SPR칩의 사진이다.

3. 균일유동 마이크로 반응기의 마이크로 PIV 측정

3.1 실험 방법

제작한 SPR 칩의 반응기 내부를 마이크로 PIV 측정 기법으로 속도장을 측정하였다. Fig. 5(a)는 마이크로 PIV 측정을 위해 구성된 실험 장치의 개략도를 보여준다⁽⁶⁾. 작동유체는 증류수를 사용하였고, 유체 추적 입자는 Rhodamine B fluorescent particle(Dp: 8~10 μm)을 사용하였다. 실린지 펌프를 이용하여 3 ml/min의 일

Fig. 4. Newly designed SPR chip with uniform flow.

정한 유량으로 유체를 주입하였고, 4X objective lens와 10 bit cooled CCD 카메라(해상도 1280 pixel×1024 pixel, pco 1200hs, PCO)를 이용하여 챔버 내의 입자 영상을 취득하였다. 광원은 할로겐 램프가 사용되었고, 측정된 이미지의 크기(Field of view)는 3.45 mm×2.76 mm이며, 챔버의 전체 사이즈는 7.2 mm×6.0 mm이다. 챔버 전체 사이즈가 크기 때문에 6개의 소구간으로 나누어 측정하였다. Fig. 5(b)는 6개의 소구간 나누어 측정된 이미지를 보여준다. 챔버에서 6개의 소구간 중 3개는 입구 구간 (Section I~III)이며 나머지 3개는 출구 구간 (Section IV~VI)이다. 각 구간마다 1001장의 이미지를 638.66 fps 속도로 취득하였으며, 이중 프레임 상호상관기법 (2 frame cross-correlation)을 사용하였다. Interrogation windows 크기는 48×48 픽셀이고 FFT 사이즈는 64×64 픽셀이며, 이미지는 50% 중첩되었다. 각각의 측정 구역마다 데이터 처리 후 양상불 속도 벡터장을 획득하였다. 얻어진 양상불 속도 벡터

장은 챔버의 실제 위치와 일치되게 정렬되었고, 정렬된 6개의 양상불 속도장을 통하여 전체 챔버에 관한 속도 벡터장을 추출하였다.

(a) Schematic diagram of experimental

(b) Measurement sections of microreactor

Fig. 5. Experimental apparatus of experimental setup for μ -PIV and measurement sections of micro reactor.

(a) Flow vector field by μ -PIV measurement

(b) Velocity profile at the line (i) and (ii)

Fig. 6. μ -PIV measurement for designed microreactor.

3.2 마이크로 측정 결과

Fig. 6(a)는 마이크로 PIV 기법을 통해 측정된 마이크로 반응기 내부의 속도 벡터장을 보여준다. 실린지 펌프를 통해 주입된 액체시료는 마이크로 반응기 내의 10개 기둥에 의해 생성된 11개의 마이크로 채널을 통해 마이크로 챔버 내부로 유입된다. 입구와 출구 측 모두 가장자리에 위치한 채널에서의 속도 크기가 큰 것으로 나타나지만, 전체적으로 유동장의 속도크기가 유사함을 확인할 수 있다. 마이크로 PIV 측정결과를 전산유체해석 결과와 비교하기 위해, 전산해석에서와 같은 위치에서 속도분포를 추출하여 그 결과를 비교해 보았다. Fig. 6(b)는 챔버의 입구와 (line (i)) 챔버의 중심 (line (ii))에서의 속도크기를 나타낸다. 전체적으로 실험을 통한 속도크기의 값은 전산유체해석 결과 값보다 작다. 가장 큰 이유는 챔버의 깊이에 따른 높은 전단율에 인한 것이라고 판단된다. 또한 실험을 진행한 단면이 정확히 중간높이 (챔버 바닥에서 0.25 mm)에 비해 조금의 오차가 있는 것으로 판단된다. 챔버의 입구영역에서 최고속도는 0.025~0.015 m/s 이며, 금 박막이 위치한 챔버의 중앙에서 속도 범위는 0.013~0.018 m/s 이며 평균 속도 크기는 약 0.014 m/s 이다.

또한, 측정 결과 챔버 내부에서 재순환류가 생성되지 않는 것을 확인하였다. 마이크로 PIV를 적용하여 챔버 내부를 유동가시화하고 전산해석 결과와 비교해 본 결과, 설계 및 제작된 마이크로 반응기는 반응 챔버 내부에서 균일한 유동을 발생시키는 것을 확인할 수 있었다.

4. 결 론

균일운동량 이론을 적용하여 마이크로 반응기의 형상을 설계하였고, 설계된 마이크로 반응기는 전산유체해석을 수행하여 균일 유동이 형성되고 있음을 확인하였다. 이 결과를 토대로 SPR칩을 제작하였으며, 마이크로 PIV 측정기법을 이용하여 마이크로반응기 내부에서의 유동장을 정량적으로 측정하였다. CFD 해석 결과와 마이크로 PIV 측정기법을 이용한 유동가시화

결과 모두 반응기 입구에서는 제트유동 형상을 보이거나 박막 중심 영역에서의 유동은 점성에 의한 운동량 확산으로 균일한 유동이 형성되는 것을 확인할 수 있었다. 일반적인 PIV측정에 의한 속도크기는 초점두께의 영향으로 CFD보다 조금 낮은 값을 보였다.

후 기

이 논문은 부산대학교 자유과제 학술 연구비(2년)에 의하여 연구되었음. 본 연구는 2010년 2단계 두뇌한국(BK)21 사업에 의해 지원되었음.

참고문헌

- 1) Lei C.X., Gong F.C., Shen G.L., Yu R.Q., 2003, "Amperometric immunosensor for Schistosoma japonicum antigen using antibodies loaded on a nano-Au monolayer modified chitosan-entrapped carbon paste electrode", *Sensors and Actuators B: Chemical*, Vol. 96, No. 3, pp 582-588.
- 2) Chen H. X., Kim Y. S., Keum S. R., Kim S. H., Choi H. J., Lee J. B., An W. G., Koh, K., 2007, "Surface Plasmon Spectroscopic Detection of Saxitoxin", *Sensors*, Vol. 7, No. 7, pp 1216-1223.
- 3) Lyon L. A., Musick M. D., Natan M. J., 1998, "Colloidal Au-Enhanced Surface Plasmon Resonance Immunosensing", *Anal. Chem.*, Vol. 70, No. 24, pp 5177-5183.
- 4) Lee J. B., Chen H. X., Lee J. W., Sun F. F., Kim C. M., Chang C. H., Koh, K., 2009, "A Possible Merge of FRET and SPR Sensing System for Highly Accurate and Selective Immunosensing", *Bull. Korean Chem. Soc.*, Vol. 30, No. 12, pp 2905-2908.
- 5) Commenge J. M., Falk L., Corriou J. P., Matlosz M., 2002, "Optimal design for flow uniformity in microchannel reactors", *AIChE journal*, Vol. 48, No. 2, pp 345-358.
- 6) Yoon S. Y., Kim K. C., 2004, "Analysis of Flow in a Microchannel Branch by Using Micro-PIV Method", *Trans. of the KSME (B)*, Vol. 28, No. 9, pp 1015-1021.