점도 차이를 이용한 간단하고 효율적인 액적의 병합 방법

진병주* · 김영원** · 유정열†

Simple and Highly Efficient Droplet Merging Method using Viscosity Difference

Byungju Jin, Young Won Kim and Jung Yul Yoo

Key Words : Microfluidic device(미세유체소자), Droplet merging(액적 병합), Straight channel(직선 채널), Viscosity difference(점성차이), Water/Glycerol mixture(물과 글리세롤 혼합액)

Abstract

Simple and highly efficient droplet merging method is proposed, which enables two nanoliter or picoliter droplets to merge regularly in a straight microchannel. We observe that two droplets of the same size but of different viscosities are merged by velocity difference induced as they are transported with the carrier fluid. To make viscosity difference, the mass ratio of water and glycerol is varied. Two droplets of the same size or of different sizes are generated alternatingly in the cross channel by controlling flowrates. This droplet merging method can be used to mix or encapsulate one target sample with another material, so that it can be applied to cell lysis, particle synthesis, drug discovery, hydrogel-bead production, and so on.

기호설명

Ca	:	Capilliary number
H	:	채널 높이 (μm)
W	:	채널 너비 (μm)
Q_o	:	oil phase 유량 (μl/h)
Q_{w1}	:	water phase I 유량 (μl/h)
Q_{w2}	:	water phase II 유량 (μl/h)

1. 서 론

2001 년 Throsen 등[(1)]에 의해 마이크로 채널에서 미세액적 생성에 관한 연구가 시작된 이래로 가히 폭발적이라고 할 만큼 많은 연구가 진행되어 왔다. 이러한 가운데 한 가지 관심을 받기 시작한 것은 마이크로 채널을 이용한 간단하고 효율적인 액적의 병합에 관한 연구라고 할 수 있다. 액적의 병합에 대해서는 이미 Olbricht 등[(2)]에 의해 소개된 적이 있다. 그러나 균일한 크기의 액적을 정확하게 제어하여 병합하는 방법에 대해서는 더욱 많은 연구가 필요하다고 할 수 있다. 최근에는 마이크로 채널에서 균일한 크기(monodisperse)의 액적을 생성하여 병합하는 연구가 몇몇 연구진에 의해 관심을 받기 시작하였다. 마이크로 채널에서 형성된 액적은 크기 변화가 5 % 이내로 매우 작고, 나노 리터 혹은 피코 리터의 극히 작은 크기를 가질 뿐만 아니라 초당 수십~수천 개의 액적을 생성할 수 있다. 이러한 액적을 병합할 경우 매우 정량적인 물질의 합성이 가능할 뿐만 아니라 액적의 병합 시 신속한 혼합이 이루어지며, 증발이나 오염 등을 막을 수 있다. 또한 하이드로젤 비드(hydrogel-bead)등을 생성할 경우 비드가 생성되기 전 고결에 의해 채널이 막히는 문제도 해결할 수 있다.

마이크로 채널을 이용하여 액적을 병합하는 기존 연구에서는 두 액적을 병합하기 위하여 각각의 액적을 분리 생성하고 채널형상에 의한 효과나 전기력과 같은 추가적인 힘에 의해 병합하는 방법이 연구되었다.[(4,5,6,7,8)] 그러나 두 액적을 각각 분리하여 생성할 경우 유체의 주입구가 여러 개로 늘어나 제어하기 어려운 점이 있고, 정확하게 동기화시켜(synchronizing) 병합하기가 어려우며, 액적의 크기 변화가 심한 추가적인 문제를 발생할 수 있다. 이는 또한 분석의 오차 요인이 될 수 있으며, 병합된 액적과 병합되지 않은 액적을 분리하기 위해 별도의 채널이나 분리장치가 필요하게 되는 단점이 있다. 뿐만 아니라 병합 비율을 높이기

† 책임저자, 회원, 서울대학교 기계항공공학부, 서울대학교 정밀기계설계공동연구소
E-mail : jyyoo@snu.ac.kr
TEL : (02)880-7112 FAX : (02)883-0179
* 서울대학교 기계항공공학부
** 서울대학교 기계항공공학부

위해 전기력과 같은 추가적인 외력을 가해 주어야 하고, 이렇게 전기력을 가해 주어도 완벽한 동조화가 보장되지 않는다는 단점을 피할 수 없다.

이러한 단점을 해결하는 방법으로 십자형태의 채널을 이용하여 액적을 번갈아 가면서(alternatingly) 형성하고 두 액적을 병합하는 방법을 생각해 볼 수 있다. 십자형태의 채널을 이용한 액적의 생성에 관한 연구는 몇 몇 연구진에 의해 수행되었다.[9,10] 그러나 십자 채널을 이용한 액적의 병합에 관한 연구는 Hung 등[11]에 의해 최초로 연구되었다. Hung 등[11]은 십자형태의 채널에서 번갈아 가면서 생성되는 액적을 확대채널(diverging channel)을 이용하여 크기가 같은 두 액적을 병합하는 방법에 대해 연구하였다. 그러나 확대 채널의 경우는 크기가 같은 두 액적을 병합시킬 수 있다는 장점이 있으나 병합된 액적이 다시 병합될 수 있는 문제나 특정 유량에 맞게 채널 형상을 설계해야 한다는 단점이 있다.

따라서 본 연구에서는 십자 채널을 이용하여 두 액적을 교대로 규칙적으로 생성하고 이렇게 생성된 두 액적을 직선 채널에서 병합하는 방법에 대해 연구하였다. 이러한 방법이 가능하기 위해서는 크기가 다른 두 액적을 번갈아 가면서 생성하는 방법이 있으나 이 경우 같은 크기의 액적을 병합하기 어렵다는 단점이 있다. 따라서 본 연구에서는 두 액적의 점도 차이만을 이용하여 크기가 같은 액적까지도 병합할 수 있는 방법에 대해 제안한다.

마이크로 채널에서의 액적의 병합 원리를 이해하기 위해서는 마이크로 채널에서의 기포 및 액적의 속도에 대한 이해가 필수적이다. 1935 년 Fairbrother 등[12]이 전기삼투현상(electro-endosmosis)에서의 유체 속도를 구하기 위해 속도의 지표로 사용되는 기포(indicator bubble)의 속도에 대해 실험하였으며 기포와 벽면 사이에 존재하는 필름층에 의한 효과(drainage effect)에 의해 기포의 속도가 주변 유체의 속도보다 빠르게 됨을 밝혔다. 또한 Bretherton[13]에 의해 상세한 해석이 이루어졌으며 그 뒤로 많은 관련 연구들이 수행되었다[14,15]. 이러한 연구들은 원형관 내에서 기포에 대한 실험 및 수치해석 연구결과들이었다. 기본적으로 기포의 속도는 주변 유체의 평균 속도에 비해 빠른 것으로 알려져 있으며, 원형관에서 액적이 관의 직경보다 긴 경우 capillary number 의 함수로 나타낼 수 있으며, 관의 직경보다 작은 구 형태의 경우 관의 직경에 대한 액적의 크기의 비(λ)의 함수로 나타내어 진다.

4 각 채널의 경우도 원형관과 유사하지만 단면의 형상과 비대칭성으로 인해 차이가 있다. Thulasides 등[16]은 2 mm 정도 크기의 원형관과 4 각 단면을 갖는 채널에서 Ca 수에 따른 기포의 속도를 측정하는 실험을 수행하여 Ca 수가 증가할 때 기포의 속도가 증가함을 보였다. Ahn 등[8]은 마이크로 사각 채널에서 액적의 크기에 따른 속도에 대해 연구하였으며 액적이 구 형태인 경우, 팬케익(pan-cake) 형태인 경우, 플러그(plug) 형태인 경우 액적의 속도에 대해 실험하였다. 그러나 액적의 위치의 비대칭성 등으로 인한 오차가 있었으며 점성 차이를 고려하지는 않았다. 마이크로 4 각 채널에서 점도에 따른 액적의 속도 변화에 관한 연구는 Menech 등[19]의 연구가 있었으며, 수치해석 결과 점도가 증가할 경우 액적의 속도가 줄어듬을 확인하였다. 그러나 액적의 크기가 채널의 너비에 비해 상당한 경우에 대해서만 연구가 수행되었다.

따라서 본 연구에서는 마이크로 채널에서 액적의 점도에 따른 속도에 대한 연구와 이를 기초로 동일한 크기의 액적을 병합할 수 있는 간단하고 효율적인 액적의 병합 방법을 제안하고자 한다.

2. 채널 제작 및 실험 방법

2.1 채널 제작

채널 제작을 위한 마스터는 Bio-IT Foundry Center 에 의뢰제작되었다. 먼저 실리콘 웨이퍼 위에 음의 감광제(negative photoresist)인 SU-8(2050)을 골고루 바르고 스핀코터(spin coater)의 회전속도를 조절하여 SU-8 의 코팅 높이를 조절한다. 코팅된 SU-8 을 65 ℃에서 3 분간, 95 ℃에서 6 분간 굽는다. SU-8 이 코팅된 실리콘 웨이퍼 위에 채널이 디자인된 포토마스크를 올려 놓고 자외선을 사용하여 14 mW 에서 35 초 노광하고, 노광이 완료된 실리콘 웨이퍼는 현상액에 담궈 현상한 후 65 ℃에서 1 분간, 95 ℃에서 5 분간 굽는다. 채널은 DA-184A 와 DA-184B (Dowcorning)를 10 : 1 로 혼합하여 사용하였으며 실리콘 웨이퍼 위에 액상의 Poly(dimethyl-siloxane)(PDMS)를 부은 다음 진공펌포에서 기포를 빼낸 후 오븐(oven)에 넣어 65° C 에서 1 시간 동안 굽는다. 4 개의 면이 모두 동일한 소수성 특성을 갖게 하기 위해서 밑판 또한 동일한 PDMS 를 사용하여 제작되었다.

준비한 PDMS channel(PDMS replica)과 밑판은 Air plasma(ulvac g-50da, harrick plasma)를 이용하여 600 Torr 에서 2 분 30 초간 플라즈마(plasma) 처리 후 붙인다. 플라즈마 처리한 PDMS 표면은 소수성에서 친수성으로 표면특성이 바뀌게 된다. 플라즈마 처리에 의해 친수성으로 바뀐 표면은 오랜 시간이 지나야 소수성을 회복하게 되며, Hung 등[12]의 결과에 따르면 채널내부에서는 소수성 회복이 더 늦게 되어 24 시간 정도가 지나야 소수성을 회

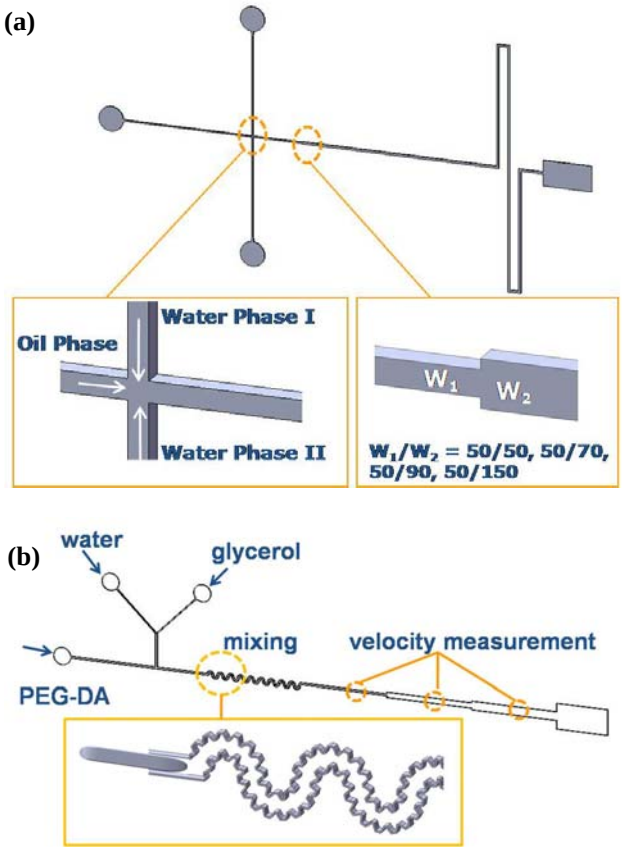

Fig. 1 A schematic of the proposed microfluidic channels; (a) Cross channel for generating droplets alternatingly. (b) Channel for measurement of droplet velocity varying the viscosity. Viscosity can be changed by the flow rate ratio of water and glycerol.

복함을 알 수 있다. 본 실험에서는 PDMS 표면의 소수성이 충분히 회복되도록 24 시간 이상 오븐에 두었다.

2.2 채널 형상 및 실험 방법

2.2.1 액적의 병합을 위한 채널

Fig. 1(a) 는 액적을 병합하기 위한 채널 형상을 나타낸다. 연구진[9,10]에 의해 사용된 적이 있는 십자형태의 채널이 사용되었으며 하류 쪽은 직선채널과 돌연 확대채널(suddenly expanded channel) 두 가지 형태의 채널을 사용하였으며 확대 비는 50 : 70, 50 : 90, 50 : 120 인 3 가지를 채택하였다. Water phase 가 유입되는 부분과 oil phase 가 유입되는 부분의 채널의 너비는 50 μm 로 동일하며 채널의 높이는 36, 42, 118 μm 인 3 가지로 제작하였다.

액적을 생성하기 위한 oil phase 물질로는 생체적합 물질인 PEG-DA(Poly ethylene glycol diacrylate M_n 258, Sigma-Aldrich)를 사용하였으며, water phase 물질로는 초순수(Deionized water) 를 사용하였다. 미세액적 생성에서 중요한 요소인 표면장력을 측정하기 위해 Du Nouy ring method (Autotensiometer, Fisher)를 사용하였다. 측정은 25 ℃에서 실시되었으며 n-hexane(17.89 mN/m)과 n-hexadecane(27.6 mN/m)의 표면장력을 이용하여 보정하였으며, 초순수의 표면장력은 72.1 mN/m, PEG-DA 표면장력은 41.7 mN/m 로 측정되었다.

유체를 주입하기 위해 시린지펌프(Syringe pump, Model 100, 210 Series, kdScientific)와 시린지(Syringe, 100F-LL-GT, SGE)를 사용하였으며, 시린지와 채널의 연결은 테플론튜브(ID = 254 μm, OD = 1587 μm)를 사용하였다. 동일한 직경과 길이를 갖는 튜브를 사용하여 액적 생성에 영향을 미치는 압력강하 조건을 동일하게 유지하였다. 채널에서 만들어진 액적은 Cooled CCD camera (SensiCam^{QE}, Cooke)와 High CCD camera(HI-Dcam PCI, maximum frame rate 2000)를 이용하여 촬영하였으며, 유량을 변화시키고 나서 액적의 크기가 균일해 지도록 수 분 이후 영상을 획득하였으며 액적의 크기는 촬영된 영상의 픽셀 수로 측정하였다.

2.2.2 점도에 따른 속도 측정을 위한 채널

물과 글리세롤은 다양한 점도에 따른 실험을 수행하기 위해 자주 사용되어 왔으며, 본 연구에서는 다양한 점도 변화에 따른 액적의 속도에 대한 영향을 확인하기 위해 물과 글리세롤을 사용하였다. 글리세롤의 질량비에 따른 물과 글리세롤 혼합액의 점도 변화에 대해 기존의 몇몇 연구가 수행되었으나[21,22] 특정 온도, 특정 질량 비율에서만 상수 값이 정해지거나 오차 값이 큰 문제가 있었다. 최근 Cheng 등[23]은 다양한 온도와 점도 범위에서의 혼합액의 점도에 대한 일관된 식을 제안하였으며, 이 식에 의해 제안된 혼합액의 점도를 사용하였다.

Fig. 1(b) 는 점도에 따른 액적의 속도를 측정하기 위한 채널을 나타낸다. 본 연구에서 제안된 채널은 크게 물과 글리세롤의 유입 부분, 액적이 생성되는 부분, 물과 글리세롤이 혼합되는 부분, 그리고 속도를 측정하는 4 부분으로 구성되어 있다. 이러한 마이크로 채널을 이용할 경우 매번 물과 글리세롤을 혼합하여 각각의 점도에 대해 실험을 반복해야 하는 번거로움을 피할 수 있을 뿐만 아니라, 물과 글리세롤의 유량만 가지고 다양한 점도 변화를 줄 수 있음으로 실험의 오차를 줄이고 일관된 경향을 확인할 수 있다. 또한 water phase 유량과 oil phase 유량을 바꾸어 다양한 크기의 액적을 생성할 수 있음으로 다양한 크기의 액적에 대한 점도 효과에 따른 속도 차이를 확인할 수 있

다.

물과 글리세롤의 유량에 따른 점도 변화가 일정하기 위해서는 액적 내 혼합이 완벽하게 이루어진 후에 속도를 측정해야 한다. 기본적으로 마이크로 채널에서는 레이놀즈 수가 작아 혼합이 잘 이루어지지 않지만 액적 내에서는 혼합이 효과적으로 이루어지는 것으로 알려져 있다[24]. 그러나 완벽한 혼합을 위해서는 상당히 긴 채널 형상이 요구된다. Liau 등[24]은 굽어진 채널(winding channel)과 울퉁불퉁한(bumpy) 채널을 사용할 경우 액적 내 혼합이 더욱 신속하고 효과적으로 이루어짐을 확인하였다. 본 연구에서는 액적의 속도를 측정하기 전 이러한 혼합 부분을 통해 물과 글리세롤이 완벽하게 혼합되도록 하였으며 이 후 속도를 측정하였다. 또한 플러그 형태의 액적과 팬케익(혹은 디스크) 형태의 액적의 속도를 측정하기 위해 확대비가 100 : 180, 100 : 240 인 돌연 확대 채널도 추가적으로 사용하였다.

또한 기포나 액적이 연속적인 형태(train)로 존재하는 경우 기포나 액적 사이의 간격이 속도에 영향을 미칠 수 있으며, 그 간격이 채널의 너비의 1.5 배 이상이 되면 간격에 따른 영향이 없는 것으로 알려져 있으므로[15,16], 본 연구에서는 액적과의 거리가 2 배 이상인 경우의 유량 조건에서 실험을 진행하였다.

3. 실험 결과

3.1 점도 차이에 의한 액적의 병합

기포나 액적의 크기가 같은 경우 액적의 속도 차이가 발생하지 않아 같은 크기의 액적을 병합할 수 없다. 그래서 같은 크기의 액적을 병합하기 위해서는 Hung 등[11]은 점진 확대 채널을 사용하였으나 이 경우 병합된 액적이 다시 병합될 수 있어 유량에 맞게 채널을 설계해야 하는 단점이 있다. 그러나 Fig. 2 와 같이 서로 점도가 다른 두 액적은 속도 차이가 발생하며, 이로 인해 비록 크기가 같은 두 액적이라도 서로 병합될 수가 있다.

Fig. 3 은 낮은 점도를 갖는 물의 유량이 높은 점도를 갖는 유체의 유량보다 큰 경우와 유량이 같은 경우, 유량이 작은 3 가지의 경우에 대한 액적의 병합 결과를 보여준다. 3 경우 모두 점도가 높은 액적의 속도가 느려 점도가 낮은 액적이 점도가 높은 액적을 따라 잡아 병합되게 된다. 점도가 낮은 액적의 크기가 큰 경우에도 점도가 높으면서 크기가 작은 액적 보다 빨라 병합되게 된다.

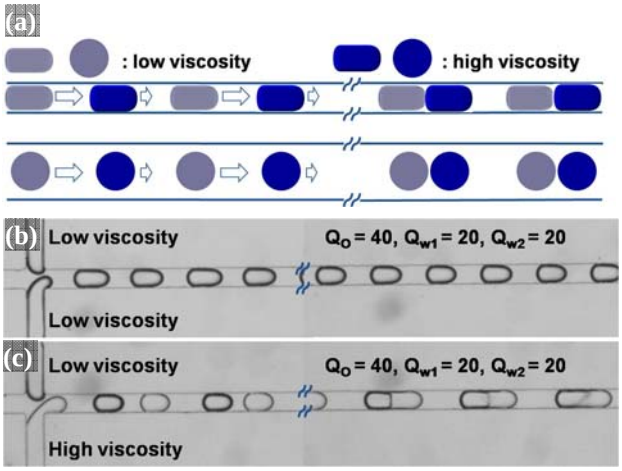

Fig. 2 (a) A schematic of droplet merging due to viscosity difference, (b) Experimental result in the case when there is no viscosity difference between two water phases. Droplets can not be merged. (b) Experimental result in the case when there is viscosity difference between two water phases. Droplets can be merged. Low viscosity fluid is water and high viscosity fluid is water/glecerol mixture (the mass ratio $x_g = 0.5$).

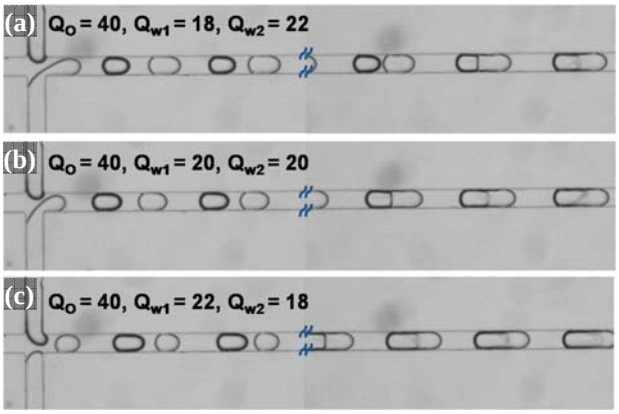

Fig. 3 Droplet generation and merging in three different flow rates: (a) the low viscosity phase flow rate is smaller than the high viscosity phase flow rate, (b) in the case of same flowrate, (c) the low viscosity phase flow rate is larger than the high viscosity phase flow rate. The low viscosity droplet is always faster than the high viscosity droplet, so that the two droplets are merged.

3.2 점도 차이에 의한 액적의 속도

Fig. 4 는 점도에 따른 액적의 속도를 측정하기 위한 채널의 4 부분을 각각 보여주고 있으며, 낮은 점도의 유체와 높은 점도의 유체가 유입되는 부분(Fig. 4(a))과 액적이 생성되고(Fig. 4(b)) 혼합된(Fig. 4(c)) 후 속도를 측정하는 부분(Fig. 4(d))을 각각 보여 주고 있다. 유입 부분에서는 물과 글리세롤을 사용하였으며, T-junction 에서 생성된 액적이 굽어진 채널을 통과하며 충분히 혼합 된 후 액적의 속도를 측정하였다.

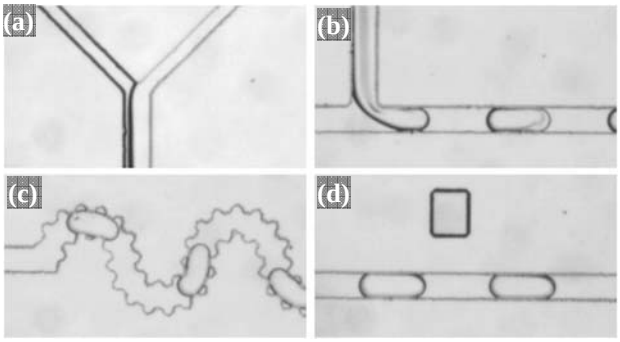

Fig. 4 Channel images for measuring the droplet velocity: (a) Inlet region for injection of low viscosity fluid (water) and high viscosity fluid (glycerol), (b) Monodisperse droplet generation at T-junction, (c) Winding and bumpy channel for rapid mixing in a droplet, (d) Velocity measurement region (velocity is measured by calculating the number of pixels).

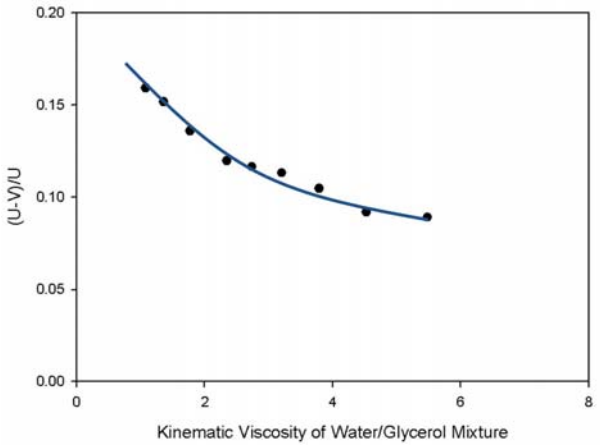

Fig. 5 Droplet velocity variation with the kinematic viscosity of water and glycerol mixture. The oil phase flow rate (150 μl/h) and the total flow rate are constant (250 μl/h), but flow rates of water and glycerol are varied.

액적의 속도는 주변 유체의 평균속도에 대한 비로 나타내었으며, 평균속도는 전체 유량을 채널의 단면적으로 나눈 값으로 사용하였다. Fig. 5 는 점도에 따른 액적의 속도에 대한 실험 결과이다. 점도가 증가함에 따라 액적의 속도가 감소하는 것을 확인할 수 있다.

4. 결론 및 고찰

본 연구에서는 액적을 병합할 수 있는 방법 중 점진 확대 채널에서 생기는 2 차 병합의 문제를 해결하면서도 전기력과 같은 추가적인 외력을 가하지 않고 간단하고 효율적으로 액적을 병합할 수 있는 방법을 제안하였다. 특별히 동일한 크기의 액적도 병할 수 있게 하기 위해 점도 차이에 의한 액적의 병합 방법에 대해 연구하였다. 두 액적이 교대로 규칙적으로 생성되게 하기 위해 십자 채널을 사용하였으며, 직선 채널에서 액적이 병합되도록 하였다. 이를 통해 같은 크기의 액적의 경우에도 두 액적이 병합되는 것을 관찰하였다. 점도가 낮은 액적이 점도가 높은 액적에 비해 큰 경우에도 점도가 낮은 액적의 속도가 빨라 두 액적이 병합되는 것을 확인하였다. 이러한 액적의 병합 방법은 오직 점도만 조절하여 액적을 병합할 수 있는 방법으로 매우 효율적인 액적의 병합 방법이라고 할 수 있다.

또한 점도에 따른 액적의 속도를 정량적으로 확인하기 위해 마이크로 유체 소자를 제안하였으며, 물과 글리세롤의 유량만을 통해 액적의 점도를 바꾸어 가며 실험을 수행하였다. 이러한 방법을 이용할 경우 하나의 마이크로 유체 소자 내에서 다양한 점도 범위에서의 액적의 속도를 측정할 수 있으며, 이를 통해 점도가 증가할수록 액적의 속도가 줄어드는 것을 확인하였다.

향후 다양한 Ca 수에 대해서도 실험이 필요하며 액적의 크기가 채널의 너비에 비해 작은 경우에 대해서도 추가적인 실험이 요구된다.

본 연구에서의 점도에 따른 액적의 속도 측정 연구는 마이크로 채널 내에서 액적의 특성을 이해하는 데 효과적으로 적용될 수 있으며, 간단하고 효율적인 두 액적의 병합 기술은 미세유체소자를 이용하여 하이드로겔 비드 등을 생성하거나 세포에 대한 약물 반응을 확인하는 등 두 물질을 정량적으로 혼합하는 연구에 효과적으로 적용될 수 있다.

후 기

본 연구는 문제해결형 인력양성 사업(**400-20070190**)과 서울대학교 마이크로 열시스템 연구센터의 지원으로 수행되었으며 이에 감사 드립니다.

참고문헌

(1) Thorsen, T., Roberts, R. W., Arnold, F. H. and Quake, S. R., 2001, “Dynamic Pattern Formation in a Vesicle-Generating Microfluidic Device,” *Phys. Rev. Lett.,* Vol. 86, No. 18, pp. 4163~4166.

(2) Aul, R. W. and Olbricht, W. L., 1991, “Coalescence of Freely Suspended Liquid Drops in Flow through a Small Pore,” *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol. 145, No. 2, pp. 478~492.

(3) Liu, K., Ding, H., Chen, Y. and Zhao, X.-Z., 2007, "Droplet-Based Synthetic Method Using Microflow Focusing and Droplet Fusion," *Microfluid Nanofluid*, Vol. 3, pp. 239~243.

(4) Wang, C., Nguyen, N.-T. and Wong, T. N., 2007, "Optical Measurement of Flow Field and Concentration Field inside a Moving Nanoliter Droplet," *Sensors and Actuators A*, Vol. 133, pp. 317~322.

(5) Link, D. R., Grasland-Mongrain, E., Duri, A., Sarrazin, F., Cheng, Z., Cristobal, G., Marquez, M. and Weitz, D. A., 2006, "Electric Control of Droplets in Microfluidic Devices," *Angew. Chem. Int. Ed.*, Vol. 45, pp. 2556~2560.

(6) Tan, Y.-C., Ho, Y. L. and Lee, A. P., 2007, "Droplet Coalescence by Geometrically Mediated Flow in Microfluidic Channels," *Mircofluid Nanofluid*, Vol. 3, pp. 495~499.

(7) Shintaku, H., Kuwabara, T., Kawano, S., Suzuki, T., Kanno, I. and Kotera, H., 2007, "Micro Cell Encapsulation and its Hydrogel-Beads Production Using Microfluidic Device," *Microsyst Technol*, Vol. 13, pp. 951~958.

(8) Ahn, K., Agresti, J., Chong, H., Marquez, M. and Weitz, D. A., 2006, "Electrocoalescence of Drops Synchronized by Size-Dependent Flow in Microfluidic Channels," *Appl. Phys. Lett.,* Vol. 88, 264105-1~3.

(9) Zheng, B., Tice, J. D. and Ismagilov, R. F., 2004, "Formation of Droplets of Alternating Composition in Microfluidic Channels and Applications to Indexing of Concentrations in Droplet-Based Assays," *Anal. Chem.,* Vol. 76, pp. 4977~4982.

(10) Okushima, S., Nisisako, T., Torii, T. and Higuchi, T., 2004, "Controlled Production of Monodisperse Double Emulsions by Two-Step Droplet Breakup in Microfluidic Devices," *Langmuir*, Vol. 20, pp. 9905~9908.

(11) Hung, L.-H., Choi, K. M., Tseng, W.-Y., Tan, Y.-C., Shea, K. J. and Lee, A. P., 2006, "Alternating Droplet Generation and Controlled Dynamic Droplet Fusion in Microfluidic Device for CdS Nanoparticle Synthesis," *Lab Chip*, Vol. 6, pp. 174~178.

(12) Hung, L.-H. and Lee, A. P., 2004, "Optimization of Droplet Generation by Controlling PDMS Surface Hydrophobicity," *2004 ASME International Mechanical Engineering Congress and RD&D Expo*, November 13-19, Anaheim, California.

(13) Fairbrother, F. and Stubbs, A. E., 1935, "Studies in Electro-Endosmosis. Part IV. The "Bubble-tube" Method of Measurement,", *J. Chem. Soc.*, Vol. 1, pp. 527~529.

(14) Bretherton, F. P., 1961, "The Motion of Long Bubbles in Tubes," *J. Fluid Mech.,* Vol. 10, pp. 166~188.

(15) Hyman, W. A. and Skalak, R., 1972, "Viscous Flow of a Suspension of Liquid Drops in a Cylindrical Tube," *Appl. Sci. Res*., Vol. 26, pp. 27~51.

(16) Ho, B. P. and Leal, L. G., 1975, "The Creeping Motion of Liquid Drops through a Circular Tube of Comparable Diameter," *J. Fluid Mech.,* Vol. 71, pp. 361~383.

(17) Kolb, W. B. and Cerro, R. L. 1993, "The Motion of Long Bubbles in Tubes of Square Cross Section," *Phys. Fluids A,* Vol. 5, No. 7, pp. 1549~1557.

(18) Thulasidas, T. C., Abraham, M. A. and Cerro, R. L., 1995, "Bubble-Train Flow in Capillaries of Circular and Square Cross Section," *Chemical Emlineering Science*, Vol. 50, No. 2, pp. 183~199.

(19) Urbant, P., Leshansky, A. and Halupovich, Y., 2008, "On the Forced Convective Heat Transport in a Droplet-Laden Flow in Microchannels," *Microfluid Nanofluid*, Vol. 4, pp. 533–542.

(20) Menech, M. D., 2006, "Modeling of Droplet Breakup in a Microfluidic T-Shaped Junction with a Phase-Field Model," *Physical Review E,* Vol.73, pp. 031505-1~9.

(21) Shankar, P. N. and Kumar, M., 1922, "Experimental-Determination of the Kinematic Viscosity of Glycerol Water Mixtures," *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, Vol. 444, No. 1922, pp. 573~581.

(22) Segur, J. B. and Oberstar, H. E., 1951, "Viscosity of Glycerol and its Aqueous Solutions," *Ind. Eng. Chem.,* Vol. 43, No. 9, pp. 2117~2120.

(23) Cheng, N.-S., 2008, "Formula for the Viscosity of a Glycerol-Water Mixture," *Ind. Eng. Chem. Res.*, Vol. 47, pp. 3285~3288.

(24) Liau, A., Kamik, R., Majumdar, A. and Cate, J. H. D., 2005, "Mixing Crowded Biological Solutions in Milliseconds," *Anal. Chem.* , Vol. 77, pp. 7618~7625.