

(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2022-0036538

(43) 공개일자 2022년03월23일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

C09J 1/00 (2006.01) C01B 32/198 (2017.01)

C01G 3/12 (2006.01) C09J 5/00 (2006.01)

(52) CPC특허분류

C09J 1/00 (2013.01)

C01B 32/198 (2021.01)

(21) 출원번호 10-2020-0118881

(22) 출원일자 2020년09월16일

심사청구일자 2021년07월02일

(71) 출원인

서강대학교산학협력단

서울특별시 마포구 백범로 35 (신수동, 서강대학교)

(72) 발명자

정봉근

서울특별시 마포구 백범로 35 서강대학교

임재현

인천광역시 부평구 부흥로293번길 24, 1002호

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

윤대웅

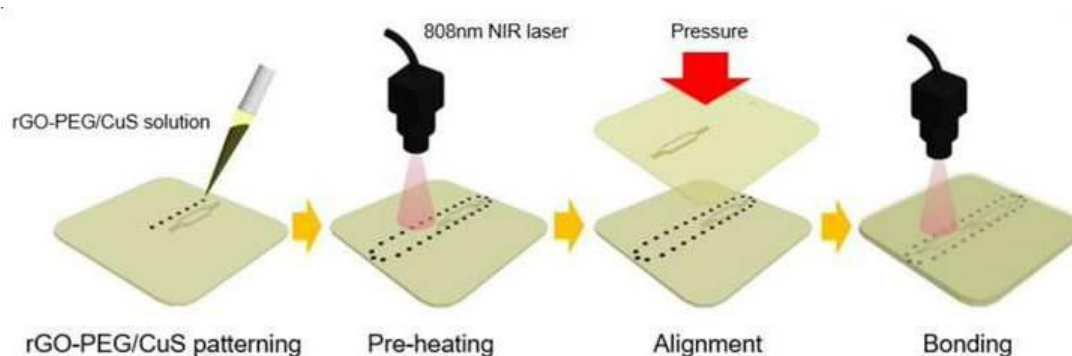
전체 청구항 수 : 총 16 항

(54) 발명의 명칭 그래핀-황화구리 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물, 이의 제조방법 및 이를 이용한 미세 유체칩의 제조방법

(57) 요약

본 발명은 그래핀-황화구리 복합체의 광열효과를 이용하여 플라스틱 재질의 칩을 접착하는 기술에 관한 것으로서, 상기 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물을 이용하면 플라스틱 칩의 변형 없이 누수를 잘 견디는 미세유체칩을 제조할 수 있으므로, 이를 효과적으로 미세유체칩의 제작에 이용할 수 있다.

대표도



(52) CPC특허분류

C01G 3/12 (2013.01)

C09J 5/00 (2019.08)

C09J 2301/416 (2020.08)

(72) 발명자

김영재

서울특별시 송파구 양재대로72길 14, 101동 601호

이종민

대구광역시 달서구 야외음악당로38길 52, 107동 1101호

최형우

서울특별시 마포구 백범로 35 서강대학교

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	2017374039
과제번호	2017M3A7B4039937
부처명	과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명	한국연구재단
연구사업명	나노소재원천기술개발
연구과제명	모듈칩 본딩을 위한 나노소재 기술개발
기 여 율	40/100
과제수행기관명	서강대학교
연구기간	2020.01.01 ~ 2020.12.31

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1711105588
과제번호	2015M3D3A1A01064926
부처명	과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명	한국연구재단
연구사업명	C1가스리파이너지사업
연구과제명	가스 전달 한계를 극복하는 고효율 C1 가스 전환 시스템 개발
기 여 율	30/100
과제수행기관명	서강대학교
연구기간	2020.01.01 ~ 2020.12.31

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	2019392032
과제번호	2019M3A9H2032547
부처명	과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명	한국연구재단
연구사업명	바이오의료기술개발사업
연구과제명	콩팥 오가노이드 스크리닝을 위한 마이크로 시스템 개발
기 여 율	30/100
과제수행기관명	서강대학교
연구기간	2020.03.01 ~ 2020.12.31

명세서

청구범위

청구항 1

그래핀(graphene)-전이금속화합물 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서, 그래핀은 친수성 고분자와 반응 후 환원된 산화그래핀(graphene oxide; GO)인 것인, 광열접착용 조성물.

청구항 3

제2항에 있어서, 친수성 고분자는 폴리에틸렌글리콜(polyethyleneglycol; PEG), 폴리비닐알코올(polyvinylalcohol; PVA), 폴리아크릴산(polyacrylicacid; PAA), 폴리비닐피롤리돈(polyvinylpyrrolidone; PVP), 폴리우레탄(polyurethane; PU) 및 폴리테트라플루오로에틸렌(polytetrafluoroethylene; PTFE)로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상인 것인, 광열접착용 조성물.

청구항 4

제1항에 있어서, 조성물은 그래핀:전이금속화합물의 중량비가 1:1 내지 1:4인 것인, 광열접착용 조성물.

청구항 5

제1항에 있어서, 전이금속화합물은 구리(Cu), 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W), 타이타늄(Ti), 지르코늄(Zr), 하프늄(Hf), 레늄(Re), 바나듐(V), 납(Pd), 나이오븀(Nb), 백금(Pt), 탄탈륨(Ta) 및 철(Fe)로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 전이금속을 포함하는 것인, 광열접착용 조성물.

청구항 6

제1항에 있어서, 전이금속화합물은 황(S), 셀레늄(Se) 및 텔루륨(Te)으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 칼코젠 원소를 포함하는 것인, 광열접착용 조성물.

청구항 7

다음 단계를 포함하는 그래핀(graphene)-전이금속화합물 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물의 제조방법:

그래핀을 친수성 고분자와 반응 후 환원시키는 환원 단계; 및

그래핀과 전이금속화합물 나노입자를 혼합하는 복합체 형성 단계.

청구항 8

제7항에 있어서, 그래핀은 산화그래핀(graphene oxide; GO)인 것인, 광열접착용 조성물의 제조방법.

청구항 9

제7항에 있어서, 친수성 고분자는 폴리에틸렌글리콜(polyethyleneglycol; PEG), 폴리비닐알코올(polyvinylalcohol; PVA), 폴리아크릴산(polyacrylicacid; PAA), 폴리비닐피롤리돈(polyvinylpyrrolidone; PVP), 폴리우레탄(polyurethane; PU) 및 폴리테트라플루오로에틸렌(polytetrafluoroethylene; PTFE)로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상인 것인, 광열접착용 조성물의 제조방법.

청구항 10

제7항에 있어서, 그래핀:전이금속화합물의 중량비는 1:1 내지 1:4인 것인, 광열접착용 조성물의 제조방법.

청구항 11

제7항에 있어서, 전이금속화합물은 구리(Cu), 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W), 타이타늄(Ti), 지르코늄(Zr), 하프늄(Hf), 레늄(Re), 바나듐(V), 납(Pd), 나이오븀(Nb), 백금(Pt), 탄탈륨(Ta) 및 철(Fe)로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 전이금속을 포함하는 것인, 광열접착용 조성물의 제조방법.

청구항 12

제7항에 있어서, 전이금속화합물은 황(S), 셀레늄(Se) 및 텔루륨(Te)으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 칼코젠 원소를 포함하는 것인, 광열접착용 조성물의 제조방법.

청구항 13

다음 단계를 포함하는 그래핀(graphene)-전이금속화합물 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물을 이용한 미세유체칩의 제조방법:

광열접착용 조성물을 미세유체칩 하판의 목표 부위에 적하하는 적하 단계;

목표 부위에 레이저를 조사하는 제1 레이저 조사 단계; 및

상기 하판의 목표 부위에 미세유체칩 상판을 접촉시킨 후 레이저를 조사하는 제2 레이저 조사 단계.

청구항 14

제13항에 있어서, 적하 단계는 부피 1 내지 20 μ L의 광열접착용 조성물 방울을 적하하는 것인, 광열접착용 조성물을 이용한 미세유체칩의 제조방법.

청구항 15

제13항에 있어서, 적하 단계는 접착하고자 하는 길이 1 cm 기준 광열접착용 조성물 3방울 이상을 적하하는 것인, 광열접착용 조성물을 이용한 미세유체칩의 제조방법.

청구항 16

제13항에 있어서, 미세유체칩은 폴리메틸 메타크릴레이트(Poly(methyl methacrylate); PMMA), 폴리카보네이트(polycarbonate; PC) 소재인 것인, 광열접착용 조성물을 이용한 미세유체칩의 제조방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 그래핀-황화구리 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물, 이의 제조방법 및 이를 이용한 미세유체칩의 제조방법에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 초음파 처리한 산화그래핀(graphene oxide; GO)에 폴리에틸렌 글리콜(polyethylene glycol; PEG)을 결합시켜 황화구리와 혼합한 복합체를 제조하고, 이를 이용한 광열 효과 유도로 인하여 플라스틱 소재 미세유체칩의 기판을 접착시킬 수 있는 기술에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 일반적으로 미세유체칩을 제조하기 위한 방법으로는 실리콘 웨이퍼나 유리판 등과 같은 단단한 세라믹 소재 기판에 식각공정 등을 통하여 미세 미터 크기의 구조물을 형성시키고 평면 기판을 덮어서 접착시키는 과정에 의해서 제조하는 방법, 또는 유연한 소재인 폴리디메틸실록세인(polydimethylene siloxane, PDMS) 등과 같은 고분자 소재를 사용하여 소프트리소그래피(soft-lithography) 공정 등에 의해서 제조하는 방법 등이 사용된다.

[0003] 이 중 유리판을 사용하여 박막 칩 레플리카나 미세유체칩을 제조하는 방법에 관해서는 대한민국 등록특허 10-0788458 등에서 제시하고 있다. 그러나 단단한 소재인 실리콘 웨이퍼나 유리판 등을 사용하여 제조한 미세유체칩의 경우에 미세 구조물이 있는 판과 평면 판 사이의 접착이 어려울 뿐만 아니라, 제조과정이나 사용 중에 미세 틈새가 발생하여 이로 인한 누수가 발생하기 쉽고, 세라믹 재질이어서 외부 충격에 취약한 단점이 있다.

[0004] 최근 대량생산과 상용화에 적합한 복합적인 플라스틱의 미세유체칩 연구의 필요성이 증가하고 있다. 기존의 접착 방법들의 경우 점도를 이용한 접착 방식을 사용하였으므로 대체로 강한 열과 압력을 가하면서 플라스틱 재질의 미세유체칩의 계면을 접착시키거나, 접착제 또는 접착필름을 사용하여 수행된다.

[0005] 그러나 기존 공정은 이러한 열과 압력에 의해 미소 구조물의 변형이 발생할 수 있고, 접착제가 유동에 노출되거나 압력에 의한 플라스틱 재질의 변형에 의해 미세유체 채널이 붕괴됨으로서 채널이 막힐 수 있고, 공정의 수행에 있어서도 초기 장치 투자비용과 유지비용이 비싸진다는 단점을 가지고 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 이에 본 발명자들은 그래핀(graphene)-황화구리 복합체의 광열효과를 이용한 플라스틱 재질의 칩 접착 기술을 개발하였다. 칩을 접착하는 기술은 샘플의 채널 내에서의 샘플이 누수되지 않게 하고, 또한 칩과 칩을 연결하는 과정에서 매우 중요한 역할을 한다.

[0007] 본 발명의 그래핀-황화구리 복합체를 이용하면 근적외선(Near infrared; NIR) 레이저를 조사하여 단시간에 플라스틱 재질의 칩의 접착이 가능하며, 접착을 위한 재료의 점도와 밀도가 낮은 액상을 사용하기 때문에 플라스틱 칩 사이에 틈새(gap)가 발생하지 않는다는 장점이 있다.

[0008] 또한 본 발명자들은 접착 후에 물리적, 기계적 특성 평가를 통하여 변형 없이 유체의 누수가 방지되는 것을 확인하였다. 따라서 그래핀-황화구리 복합체의 광열효과를 이용한 플라스틱 재질 미세유체칩 접착 기술은 칩 내의 온도가 높거나 실험이 장기간 진행되는 PCR 등과 같이 접착이 유지될 필요가 있는 연구에 사용될 수 있으며, 다양한 칩의 모듈을 조립하는 연구에 있어서는 칩과 칩의 인터페이스에도 적용될 수 있다.

[0009] 이에, 본 발명의 목적은 그래핀-전이금속화합물 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물을 제공하는 것이다.

[0010] 본 발명의 다른 목적은 그래핀-전이금속화합물 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물의 제조방법이다:

[0011] 그래핀을 친수성 고분자와 반응 후 환원시키는 환원 단계; 및

[0012] 그래핀과 전이금속화합물 나노입자를 혼합하는 복합체 형성 단계.

[0013] 본 발명의 또 다른 목적은 다음 단계를 포함하는 그래핀-전이금속화합물 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물을 이용한 미세유체칩의 제조방법이다:

[0014] 광열접착용 조성물을 미세유체칩 하판의 목표 부위에 적하하는 적하 단계;

[0015] 목표 부위에 레이저를 조사하는 제1 레이저 조사 단계; 및

[0016] 상기 하판의 목표 부위에 미세유체칩 상판을 접촉시킨 후 레이저를 조사하는 제2 레이저 조사 단계.

[0017] 본 발명의 또 다른 목적은 그래핀-전이금속화합물 복합체의 미세유체칩 광열접착 용도에 관한 것이다.

과제의 해결 수단

[0018] 본 발명은 그래핀(graphene)-황화구리 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물, 이의 제조방법 및 이를 이용한 미세유체칩의 제조방법에 관한 것으로, 본 발명에 따른 광열접착용 조성물을 이용하면 압력을 가하지 않고 광열 효과에 의하여 플라스틱 재질의 칩을 접착할 수 있다.

[0019] 본 발명자들은 그래핀-황화구리 복합체의 광열효과를 이용한 플라스틱 재질의 칩 접착 기술을 개발하였고, 이를 이용하여 레이저를 조사함으로써 레이저를 조사하여 단시간에 플라스틱 재질의 칩의 접착이 가능하며, 접착을 위한 재료로서 점도와 밀도가 낮은 액상을 사용하기 때문에 플라스틱 칩 사이에 틈새(gap)가 발생하지 않는다는 점을 확인하였다.

[0020] 이하 본 발명을 더욱 자세히 설명하고자 한다.

[0021] 이에, 본 발명의 목적은 그래핀-전이금속화합물 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물을 제공하는 것이다.

[0022] 본 발명에 있어서 그래핀은 친수성 고분자와 반응 후 환원된 산화그래핀(graphene oxide; GO)인 것일 수 있다.

[0023] 본 발명에 있어서 친수성 고분자는 폴리에틸렌글리콜(polyethyleneglycol; PEG), 폴리비닐알코올(polyvinylalcohol; PVA), 폴리아크릴산(polyacrylicacid; PAA), 폴리비닐피롤리돈(polyvinylpyrrolidone; PVP), 폴리우레탄(polyurethane; PU) 및 폴리테트라플루오로에틸렌(polytetrafluoroethylene; PTFE)로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상인 것일 수 있고, 예를 들어, PEG인 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니

다.

- [0024] 본 발명에 있어서 광열접착용 조성물은 그래핀:전이금속화합물의 중량비가 1:1 내지 1:4, 또는 1:2 내지 1:4인 것일 수 있고, 예를 들어, 1:3 내지 1:4인 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다. 그래핀과 전이금속화합물은 물리적인 혼합에 의해 복합체를 형성한다.
- [0025] 상기 전이금속화합물은 구리(Cu), 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W), 타이타늄(Ti), 지르코늄(Zr), 하프늄(Hf), 레늄(Re), 바나듐(V), 납(Pd), 나이오븀(Nb), 백금(Pt), 탄탈륨(Ta) 및 철(Fe)로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 전이금속을 포함하는 것일 수 있고, 예를 들어, 구리를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0026] 상기 전이금속화합물은 황(S), 셀레늄(Se) 및 텔루륨(Te)으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 칼코겐 원소를 포함하는 것일 수 있고, 예를 들어, 황을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0027] 본 발명의 다른 목적은 그래핀-전이금속화합물 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물의 제조방법이다:
- [0028] 그래핀을 친수성 고분자와 반응 후 환원시키는 환원 단계; 및
- [0029] 그래핀과 전이금속화합물 나노입자를 혼합하는 복합체 형성 단계.
- [0030] 본 발명에 있어서 그래핀은 산화그래핀인 것일 수 있다.
- [0031] 본 발명에 있어서 친수성 고분자는 폴리에틸렌글리콜(PEG), 폴리비닐알코올(PVA), 폴리아크릴산(PAA), 폴리비닐 피롤리돈(PVP), 폴리우레탄(PU) 및 폴리테트라플루오로에틸렌(PTFE)로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상인 것일 수 있고, 예를 들어, PEG인 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0032] 본 발명에 있어서 그래핀:전이금속화합물의 중량비는 1:1 내지 1:4, 또는 1:2 내지 1:4인 것일 수 있고, 예를 들어, 1:3 내지 1:4인 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0033] 상기 전이금속화합물은 구리(Cu), 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W), 타이타늄(Ti), 지르코늄(Zr), 하프늄(Hf), 레늄(Re), 바나듐(V), 납(Pd), 나이오븀(Nb), 백금(Pt), 탄탈륨(Ta) 및 철(Fe)로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 전이금속을 포함하는 것일 수 있고, 예를 들어, 구리를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0034] 상기 전이금속화합물은 황(S), 셀레늄(Se) 및 텔루륨(Te)으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 칼코겐 원소를 포함하는 것일 수 있고, 예를 들어, 황을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0035] 본 발명의 또 다른 목적은 다음 단계를 포함하는 그래핀-전이금속화합물 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물을 이용한 미세유체칩의 제조방법이다:
- [0036] 광열접착용 조성물을 미세유체칩 하판의 목표 부위에 적하하는 적하 단계;
- [0037] 목표 부위에 레이저를 조사하는 제1 레이저 조사 단계; 및
- [0038] 상기 하판의 목표 부위에 미세유체칩 상판을 접촉시킨 후 레이저를 조사하는 제2 레이저 조사 단계.
- [0039] 본 발명에 있어서 적하 단계는 부피 1 내지 20 μL , 1 내지 15 μL , 또는 1 내지 10 μL 의 광열접착용 조성물 방울을 적하하는 것일 수 있고, 예를 들어, 1 내지 5 μL 의 방울을 적하하는 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0040] 상기 적하 단계는 접착하고자 하는 길이 1 cm 기준 광열접착용 조성물 3방울 이상을 적하하는 것일 수 있고, 상기 방울은 많으면 많을수록 광열접착용 조성물을 사용하여 접착한 부위의 인장 강도가 높아지나, 방울 간의 거리가 지나치게 짧아 서로 병합되는 경우 결과적으로 방울의 부피가 커지는 것과 같은 조건이 되므로, 각각의 방울이 병합되지 않는 범위 내에 한한다.
- [0041] 본 발명에 있어서 제1 레이저 조사 단계는 예열(pre-heating) 단계로서, 근적외선(Near infrared; NIR) 레이저를 1.00 내지 3.00, 1.25 내지 3.00, 1.50 내지 3.00, 1.75 내지 3.00, 2.00 내지 3.00, 2.25 내지 3.00, 2.50 내지 3.00, 1.00 내지 2.75, 1.25 내지 2.75, 1.50 내지 2.75, 1.75 내지 2.75, 2.00 내지 2.75, 또는 2.25 내지 2.75 W, 예를 들어, 2.50 내지 2.75 W의 세기로 조사하는 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0042] 상기 제1 레이저 조사 단계는 4 내지 15초 동안 수행되는 것일 수 있고, 예를 들어, 8 내지 12초 동안 수행되는 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0043] 본 발명에 있어서 제2 레이저 조사 단계는 가열(heating) 단계로서, 근적외선 레이저를 1.00 내지 3.00, 1.25 내지 3.00, 1.50 내지 3.00, 1.75 내지 3.00, 2.00 내지 3.00, 2.25 내지 3.00, 2.50 내지 3.00, 1.00 내지 2.75, 1.25 내지 2.75, 1.50 내지 2.75, 1.75 내지 2.75, 2.00 내지 2.75, 또는 2.25 내지 2.75 W, 예를 들어, 2.50 내지 2.75 W의 세기로 조사하는 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0044] 상기 제2 레이저 조사 단계는 20초 내지 40초 동안 수행되는 것일 수 있고, 예를 들어, 25초 내지 35초 동안 수행되는 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0045] 본 발명의 일 구현예에서, 상기 제1 레이저 조사 단계 또는 제2 레이저 조사 단계에 있어서, 레이저가 2.5 W 이상의 범위에서 조사될 경우 광열접착용 조성물의 온도가 과도하고 급격하게 올라가 물이 튀는 현상이 나며 급격한 열로 기관의 표면이 휘어지는 결과가 나타나므로 레이저 세기를 그 이상으로 높이는 것을 제한하였다. 또한 2.50 W 이상의 레이저 조사에 대한 온도 상승량은 큰 차이가 나지 않아 접착 단계에서는 안정 상한선인 2.50 W로 레이저 조사 세기를 설정하였다.

[0046] 본 발명에 있어서 미세유체칩은 폴리메틸 메타크릴레이트(Poly(methyl methacrylate); PMMA), 폴리카보네이트(polycarbonate; PC) 소재인 것일 수 있고, 예를 들어, PMMA 소재인 것일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

발명의 효과

[0047] 본 발명은 그래핀(graphene)-황화구리 복합체의 광열효과를 이용하여 플라스틱 재질의 칩을 접착하는 기술에 관한 것으로서, 상기 복합체를 포함하는 광열접착용 조성물을 이용하면 플라스틱 칩의 변형 없이 누수를 잘 견디는 미세유체칩을 제조할 수 있으므로, 이를 효과적으로 미세유체칩의 제작에 이용할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0048] 도 1a는 본 발명의 일 실시예에 따른 광열접착용 조성물의 합성 과정을 나타낸 모식도이다.

도 1b는 본 발명의 일 실시예에 따른 광열접착용 조성물인 rGO-PEG/CuS 복합체의 혼합비에 따른 온도 변화 비교 그래프이다.

도 2a는 본 발명의 일 실시예에 따른 광열접착용 조성물인 그래핀-황화구리(rGO-PEG/CuS) 복합체의 혼합 전후를 투과전자현미경(transmission electron microscope; TEM)으로 촬영한 결과 사진이다.

도 2b는 본 발명의 일 실시예에 의해 제조된 광열접착용 조성물인 GO-PEG의 환원 여부에 따른 FT-IR(Fourier-transform infrared spectroscopy) 측정 결과 사진이다.

도 2c는 본 발명의 일 실시예에 따른 광열접착용 조성물인 rGO-PEG/CuS 복합체에 대한 흡광도 측정 결과 그래프이다.

도 3a는 본 발명의 일 실시예에 따른 미세유체칩 기관을 나타낸 사진이다.

도 3b는 본 발명의 일 실시예에 따른 광열접착용 조성물을 이용하여 기관을 접착하는 과정을 나타낸 모식도이다.

도 4a는 본 발명의 일 실시예에 따른 rGO-PEG/CuS 복합체를 이용한 레이저 접착 과정을 열화상카메라로 촬영한 온도 이미지이다.

도 4b는 본 발명의 일 실시예에 따른 접착 방법의 수행에 있어서 레이저 세기와 폴리메틸 메타크릴레이트(Poly(methyl methacrylate); PMMA)의 녹는점 도달 시간 간의 상관관계를 나타낸 그래프이다.

도 4c는 본 발명의 일 실시예에 따른 접착 방법의 수행에 있어서 레이저 세기와 가열 속도 간의 상관관계를 나타낸 그래프이다.

도 5a는 본 발명의 일 실시예에 따른 광열접착용 조성물 한 방울 기준의 부피와 인장력 간의 상관관계를 나타낸 그래프이다.

도 5b는 본 발명의 일 실시예에 따른 광열접착용 조성물 방울 개수와 인장력 간의 상관관계를 나타낸 그래프이다.

도 5c는 본 발명의 일 실시예에 따른 광열접착용 조성물 방울 개수별 접착면에 형성되는 틈새의 길이를 나타낸

사진이다.

도 5d는 본 발명의 일 실시예에 따른 광열접착용 조성물 방울 개수별 접착면에 형성되는 틈새의 길이를 나타낸 그래프이다.

도 6a는 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 미세유체칩의 유체 종류별 누수 확인 결과를 나타낸 사진이다.

도 6b는 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 미세유체칩에 물을 유체로 적용했을 경우 누수 확인 결과를 나타낸 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

이하, 본 발명을 하기의 실시예에 의하여 더욱 상세히 설명한다. 그러나 이들 실시예는 본 발명을 예시하기 위한 것일 뿐이며, 본 발명의 범위가 이들 실시예에 의하여 한정되는 것은 아니다.

본 명세서 전체에 걸쳐, 특정 물질의 농도를 나타내기 위하여 사용되는 "%"는 별도의 언급이 없는 경우, 고체/고체는 (중량/중량)%, 고체/액체는 (중량/부피)%, 그리고 액체/액체는 (부피/부피)%이다.

실시예 1: 그래핀-황화구리 복합체의 제조

1-1. 그래핀-황화구리 복합체의 제조방법

20 mL의 산화그래핀(graphene oxide; GO, 1 mg/mL)에 각각 100 mg의 EDC(N-(3-Dimethylaminopropyl)-N'와 NHS(N-hydroxysuccinimide)를 넣고 1시간 동안 초음파에 노출시킨 뒤, mPEG-NH₂(methoxy polyethylene glycol amine)와 함께 18시간 동안 교반하여 GO와 mPEG를 반응시켰다. 그 후 환원을 위해 90℃ 조건하의 20 vol%(0.05%) 디아진(N₂H₂, diazene) 조건하에서 환원하였다.

CuS 나노입자를 합성하기 위해 14 mg의 CuCl₂와 20 mg의 시트르산삼나트륨(trisodium citrate)을 넣고 교반한 뒤, 7.8 mg의 Na₂S를 넣어 90℃에서 15분간 반응시켰다. 도 1a에서와 같이, 이렇게 만들어진 rGO-PEG와 CuS 나노입자를 분당전에 혼합하였다.

rGO-PEG(0.25 mg/mL)에 대한 CuS 나노입자(0.25 내지 1.00 mg/mL)의 혼합비를 다양하게 적용할 수 있도록 희석한 뒤, 808 nm NIR 레이저(laser)를 1 W/cm²로 조사하여 온도의 변화(T, ℃)를 확인하였다.

표 1

rGO-PEG:CuS	1:0	1:1	1:2	1:3	1:4
10분 후 온도의 변화(℃)	10.6	15.2	18.0	21.3	21.9

표 1 및 도 1b에서 확인할 수 있듯이, 대조군의 rGO-PEG는 약 10℃가 상승하였다. rGO-PEG:CuS = 1:3의 비율까지는 온도가 균일하게 상승하다가, 1:4의 비율 조건에서는 온도 변화가 1:3인 경우와 차이를 보이지 않았다. 따라서 광열 분당을 위한 rGO-PEG:CuS의 적절한 비율을 1:3으로 결정하였다.

1-2. 그래핀-황화구리 복합체의 특성 확인

FETEM(Fied-Emission Transmission Electron Microscope, 200 kV)으로 합성한 복합체의 형성을 평가하였다.

실시예 1-1에 따라 직경 10 nm의 CuS 나노입자가 형성되었으며, 너비 1 μm 크기를 가진 시트 형태의 rGO-PEG가 형성되었다.

도 2a에서 확인할 수 있듯이, 투과전자현미경(transmission electron microscope; TEM)을 이용하여 1:3의 질량비로 혼합된 rGO-PEG/CuS 복합체의 형상을 평가하였을 때, rGO-PEG 표면에 다수의 CuS 나노입자가 올라가 있음을 확인하였다.

도 2b에서 확인할 수 있듯이, FT-IR(Fourier-transform infrared spectroscopy)을 이용하여 GO-PEG, rGO-PEG의

스펙트럼 분석 결과 $1,350\text{ cm}^{-1}$, 1450 cm^{-1} 에서 PEG의 고유 진동이 확인되었으며, 또한 900 cm^{-1} , $1,100\text{ cm}^{-1}$ 에서 C-O-C 진동을 확인하였다. 그리고 GO-PEG의 환원으로 인하여 O-H 신축 진동($3,450\text{ cm}^{-1}$)에 해당하는 피크가 감소하였음을 확인하였다.

[0065] 복합체의 광학 특성을 평가하기 위하여 rGO-PEG/CuS, CuS, rGO-PEG 및 GO-PEG을 각각 0.1 mg/mL의 농도로 증류수에 분산시킨 뒤 400 내지 900 nm 파장대에서 UV-vis(Ultraviolet-visible) 분광법으로 흡광도를 측정하였다.

[0066] 도 2c에서 확인할 수 있듯이, GO-PEG는 환원된 뒤(rGO-PEG/CuS)에 750 내지 900 nm의 근적외선(near infrared ray; NIR) 영역대에서 강한 빛의 흡수를 나타냈으며, CuS 나노입자 또한 NIR 영역에서 빛 흡수를 나타냈다. rGO-PEG와 CuS 나노입자(rGO-PEG/CuS)를 희석하고 측정하였을 때, 기존 CuS 나노입자보다 더 강한 NIR 흡수를 보였다.

[0068] 실시예 2: 그래핀-황화구리 복합체를 이용한 접착 조건의 확인

[0069] 본 발명에서 구현하고자 하는 대상이 되는 플라스틱 재료의 미세유체칩은 PMMA(Poly(methyl methacrylate)) 기판으로 제작되었고, 이의 녹는점은 150°C 이다. 도 3a와 같이 상판에는 구멍을 2개 뚫었고 나머지 하판은 채널만 존재한다.

[0070] 미세유체칩을 제조하기 위한 플라스틱 칩 상판 및 하판의 부착은 도 3b에 제시된 방법을 따라 수행되었다. 먼저 플라스틱 칩 하판 위의 채널 주위에 rGO-PEG:CuS를 적하하고 레이저를 이용하여 1차적으로 열을 가하였다. 열을 가한 후 플라스틱 칩의 상판을 덮고 레이저를 이용하여 다시 한번 열을 가함으로써 칩을 접착하는 방법을 사용하였다.

[0072] 2-1. 레이저 세기의 최적화

[0073] 그래핀-황화구리 복합체가 그대로 상판 하판 사이에 끼워지면 물의 습윤성에 의해 표면장력을 잃고 판 위로 퍼지게 된다. 그러한 경우 레이저 조사를 수행하기에 부적합한 조건이 되어 접착력을 발휘하지 못하게 된다.

[0074] 이를 방지하기 위해 칩의 하판 위에 적하된 그래핀-황화구리 복합체에 대하여 레이저 조사 전의 하판, 레이저로 예열(pre-heating)한 하판, 및 예열 후 상판을 덮은 후의 가열(heating) 결과에 따른 레이저가 조사되는 부분에 대한 온도 이미지를 열화상 카메라로 측정하였다.

[0075] 도 4a에서 확인할 수 있듯이, NIR 레이저 조사만으로는 PMMA 칩의 표면의 온도 변화가 없으나 그래핀-황화구리 복합체를 통한 광열효과로 통해 PMMA의 녹는점에 도달하였으므로 접착에 사용할 수 있는 조건을 최적화하였다. 또한, 그래핀-황화구리 복합체를 PMMA 하판에 놓은 경우 뿐만 아니라 이에 상판을 올린 조건에서도 발생하는 광열효과는 동일하므로 PMMA의 중점으로 인한 광열효과의 저하가 없음을 검증하였다.

[0076] 레이저의 세기를 증가시킬수록 PMMA가 녹는 온도인 150°C 에 도달하는 시간, 및 레이저 세기와 가열 속도(heating rate)의 관련성을 분석하였다.

[0077] 도 4b에서 확인할 수 있듯이, 레이저의 세기가 증가할수록 도달 시간은 짧아지고 그 격차가 줄어드는 것이 확인되었다. 그러나 레이저가 과도하게 올라갈수록 그래핀-황화구리 복합체가 받는 열이 커지므로 복합체의 방울이 튀는 현상이 일어났다.

[0078] 도 4c에 근거하여, 이를 해결하기 위하여 150°C 에 도달하는 시간의 격차가 적어지는 범위인 2.50 내지 3.00 W 중 최소값인 2.50 W를 레이저 세기 조건으로 설정하고 다음 실험을 진행하였다.

[0080] 2-2. 그래핀-황화구리 복합체 사용 조건의 최적화

[0081] 최적 가열 조건 하에 접착된 칩의 접착력이 안정적인지를 확인하기 위하여 플라스틱 칩의 판 위에 그래핀-황화구리 복합체를 부피별, 개수별로 적용하여 인장력을 측정하였다.

[0082] 부피별 측정을 위하여 하나의 플라스틱 하판 위에 복합체를 한 방울씩 떨어트리고 NIR 레이저 2.50 W 조건으로 10초간 예열(pre-heating)을 하고 상판을 겹쳐서 30초동안 가열(heating)함으로써 하판 및 상판을 접착한 다음

인장압축기로 인장력을 측정하였다. 한 방울에 해당하는 부피는 각각 5 μ L, 10 μ L, 15 μ L로 적용하였다.

[0083] 도 5a에서 확인할 수 있듯이, 그래핀-황화구리 복합체 한 방울에 해당하는 부피가 증가할수록 접착 후의 인장력이 떨어지는 것을 확인하였다.

[0084] 다음으로 적하 위치 간의 최적 간격을 도출하기 위하여 한 방울의 부피를 5 μ L로 고정하고 인장력 측정을 위하여 그래핀-황화구리 복합체의 간격 1 cm 기준 1, 2 및 3방울로 적용하여 하나의 플라스틱 판 위에 평행하게 적하하였다. NIR 레이저 2.50 W 조건으로 10초간 예열하고 상판을 겹쳐서 30초동안 가열하여 하판 및 상판을 접착한 다음 인장압축기로 인장력을 측정하였다.

[0085] 도 5b에서 확인할 수 있듯이, 간격 1 cm 기준 1, 2 및 3방울 적하한 경우 중에서 3방울의 경우에 인장력이 가장 우수하게 나타났다. 복합체의 방울 수의 경향성을 참고하여 채널 주위에 복합체들을 서로 겹치지 않는 한도 내에서 무수하게 떨어트린 결과, 기관의 표면에 복합체의 방울 수가 늘어남에 따라 인장력이 비례하여 증가함을 확인하였다.

[0086] 또한 접착된 표면을 확인하기 위하여 복합체의 개수에 따른 접착된 플라스틱 표면의 틈새도 현미경으로 측정하였다. 도 5c에서 볼 수 있듯이 각각 위에서부터 간격 1 cm 기준 1, 2 및 3방울로 적용하여 기관의 접착 과정을 수행한 후 틈새의 길이를 측정하였다.

표 2

방울 수	1	2	3
틈새 길이 (μ m)	16.92	12.33	7.65

[0088] 표 2 및 도 5d에서 확인할 수 있듯이, 동일한 면적에서 복합체의 방울 개수가 증가할수록 틈새의 길이는 줄어든다. 이에 따라 미세유체칩의 제조를 위하여 기관을 접착시키는 데 있어서, 작은 부피의 그래핀-황화구리 복합체 방울들을 상호 접촉 없이 기관 위에 최대한 많이 놓는 방법으로 접착하는 것이 효과적이라는 결론을 도출할 수 있었다.

[0090] 실시예 3: 그래핀-황화구리 복합체를 이용한 누수 차단 효과의 확인

[0091] 누수 차단 효과를 측정하기 위하여 그래핀-황화구리 복합체를 1개 방울 당 5 μ L의 부피로 설정하여 플라스틱 하판의 채널 주위를 감싸도록 단일 면적 대비 하판 전체 면적에서 24방울 적하하여 접착을 수행하였다.

[0092] 접착하여 제조된 미세유체칩으로서의 기능을 확인하기 위하여 여러 유체를 채널에 흘려 누수 여부를 확인하였다. 사용 유체로는 물, 다이메틸설폭사이드(dimethyl sulfoxide; DMSO) 및 미네랄 오일(mineral oil)을 선택하였다.

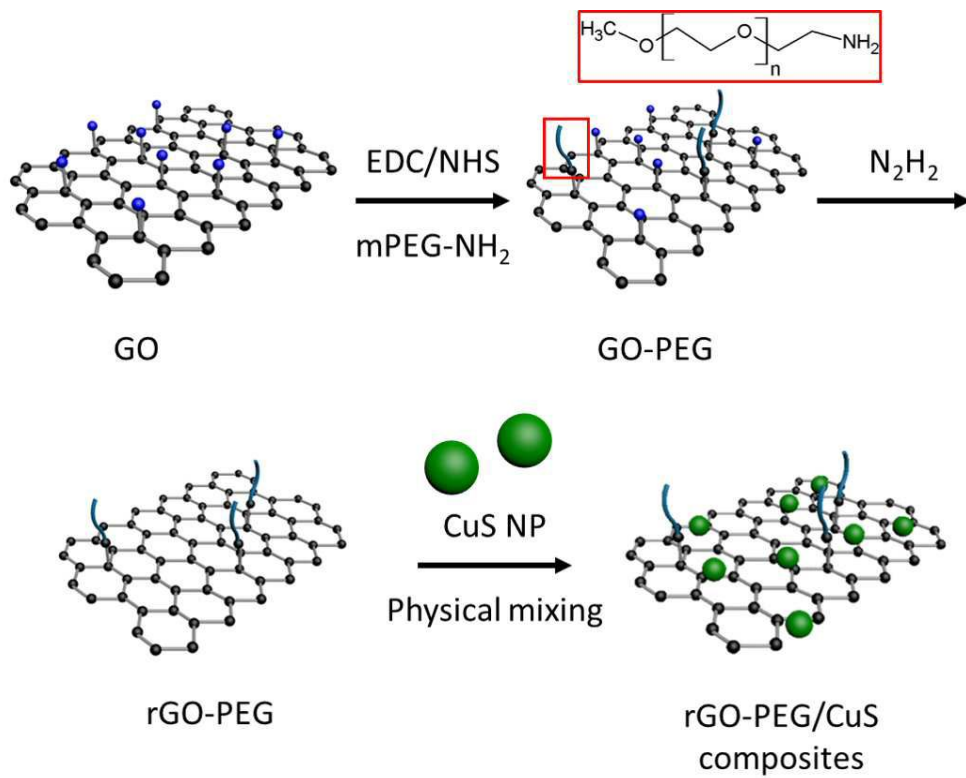
[0093] 도 6a에서 확인할 수 있듯이, 각 유체들을 10 μ L/min씩 10초마다 증가시키면서 채널 내의 붕괴를 확인하였다. 물은 200 μ L/min까지 누수를 견뎠으나, DMSO는 200 μ L/min, 미네랄 오일은 25 μ L/min에서 채널이 붕괴되는 현상을 보였다. 이로부터 채널 내에 들어가는 유체의 점도에 따라 접착된 부위가 견딜 수 있는 범위가 다르다는 점을 도출하였다.

[0094] 기존의 물을 용매로 한 경우의 마이크로칩 유량분석이 200 μ L/min까지 측정한 결과에 근거하는 점을 참고하여, 그래핀-황화구리 복합체로 접착된 칩은 물을 이용한 마이크로 유량을 테스트하기에 적합한 것으로 판단되었다.

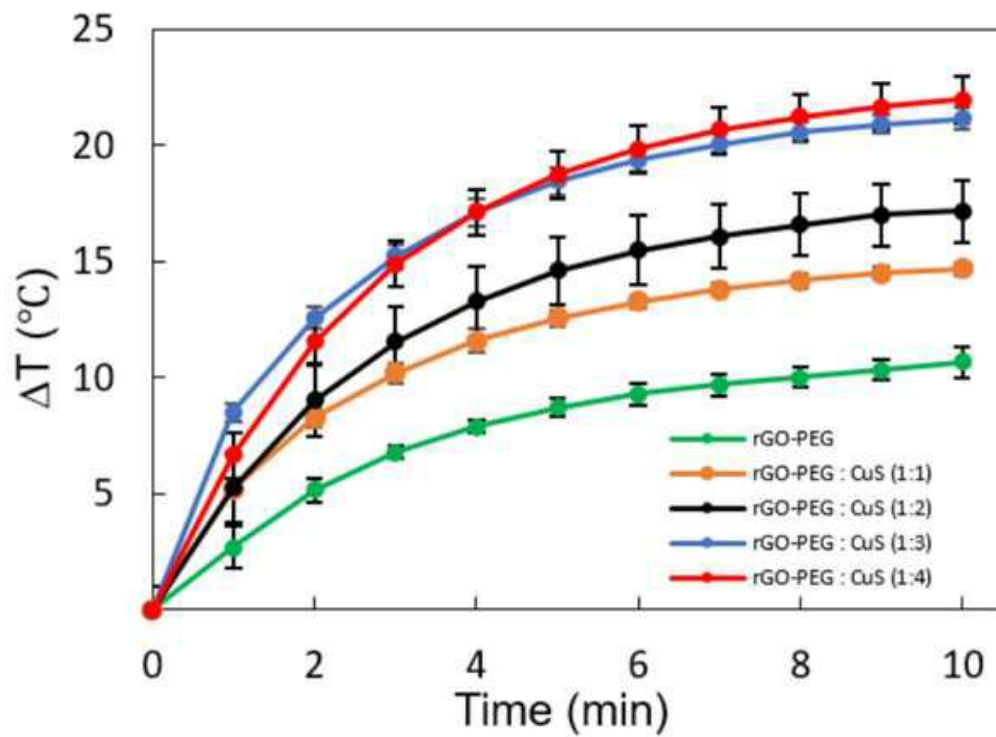
[0095] 도 6b에서 확인할 수 있듯이, 물을 일정 유량으로 흘렸을 때 칩의 접착 부위가 누수를 잘 견디는 것으로 나타났다. 따라서 본 미세유체칩이 모듈칩으로 사용되는 경우 수용성 물질을 이용하여 테스트하기에 적합한 것으로 판단되었다.

도면

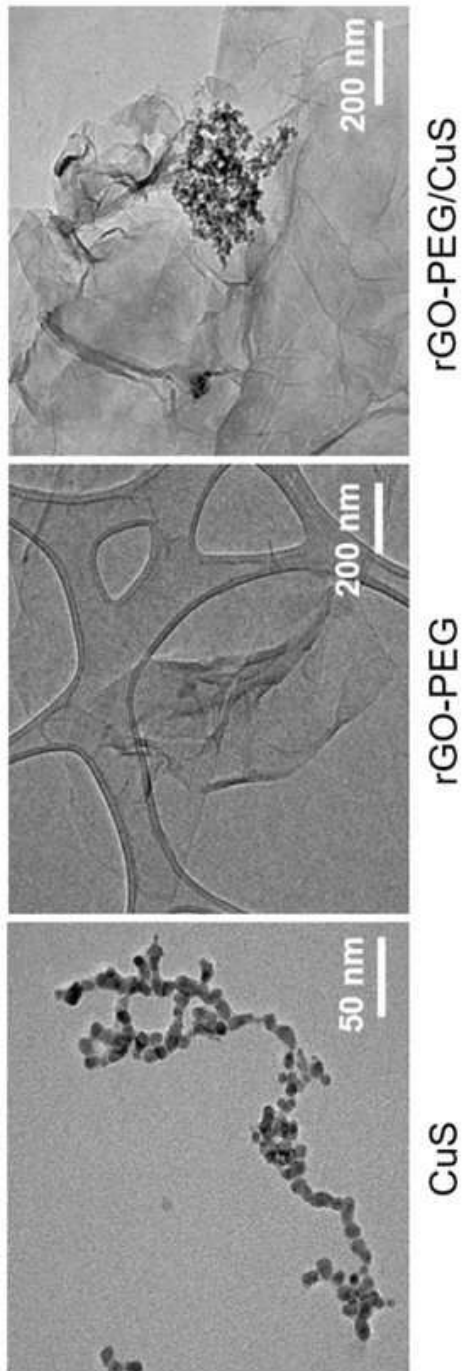
도면1a



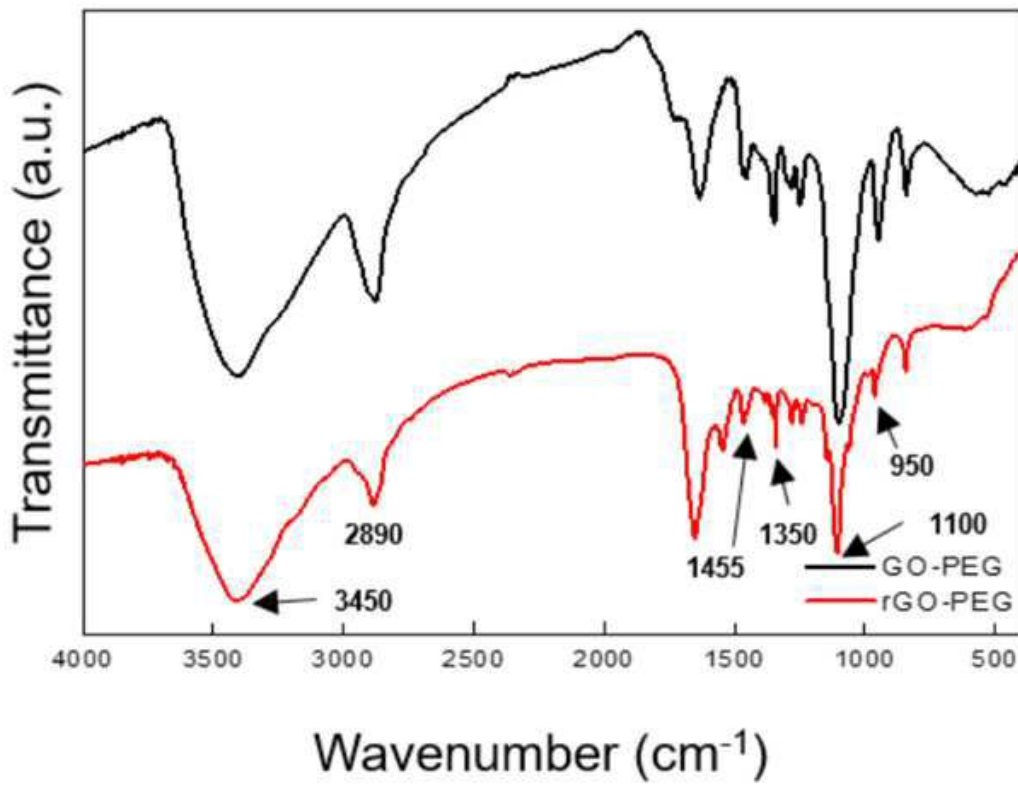
도면1b



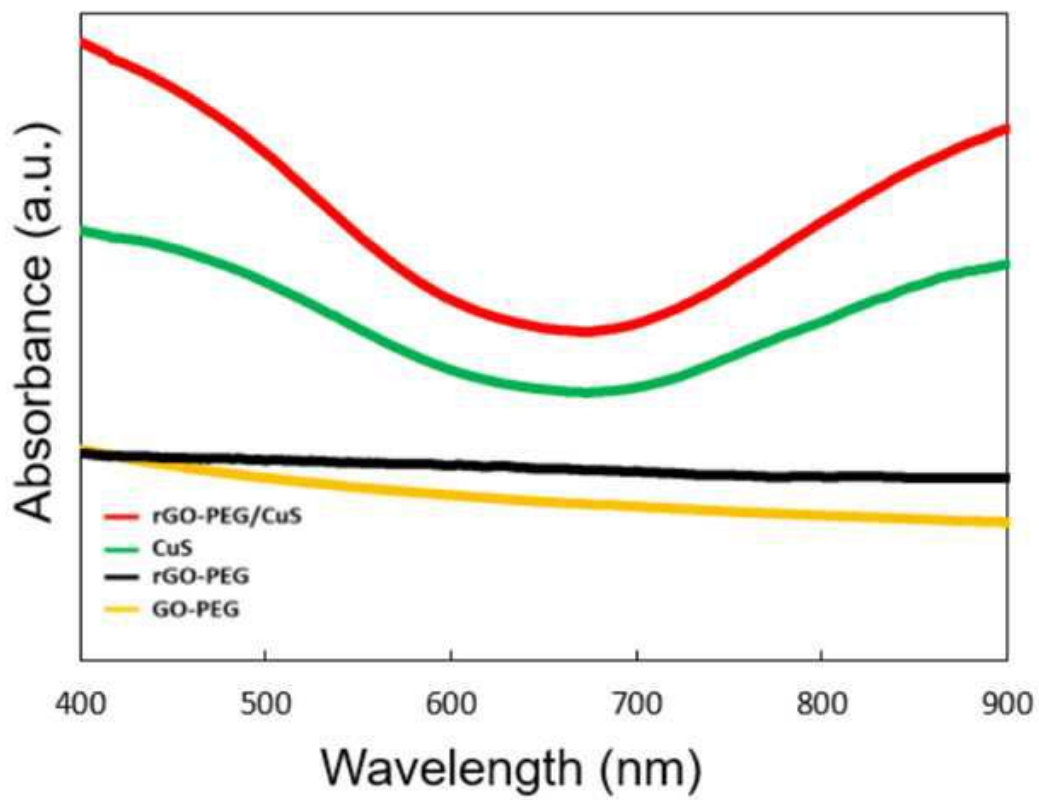
도면2a



도면2b



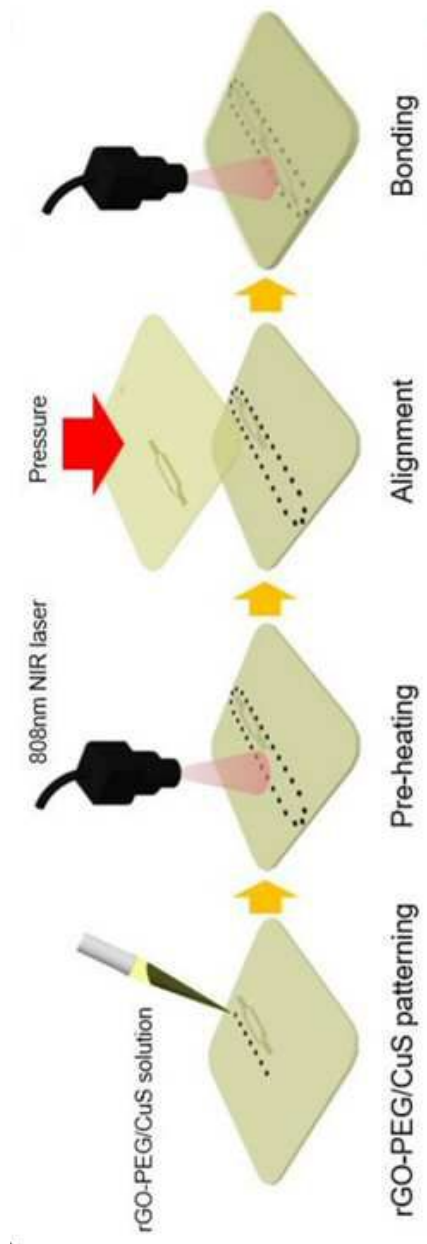
도면2c



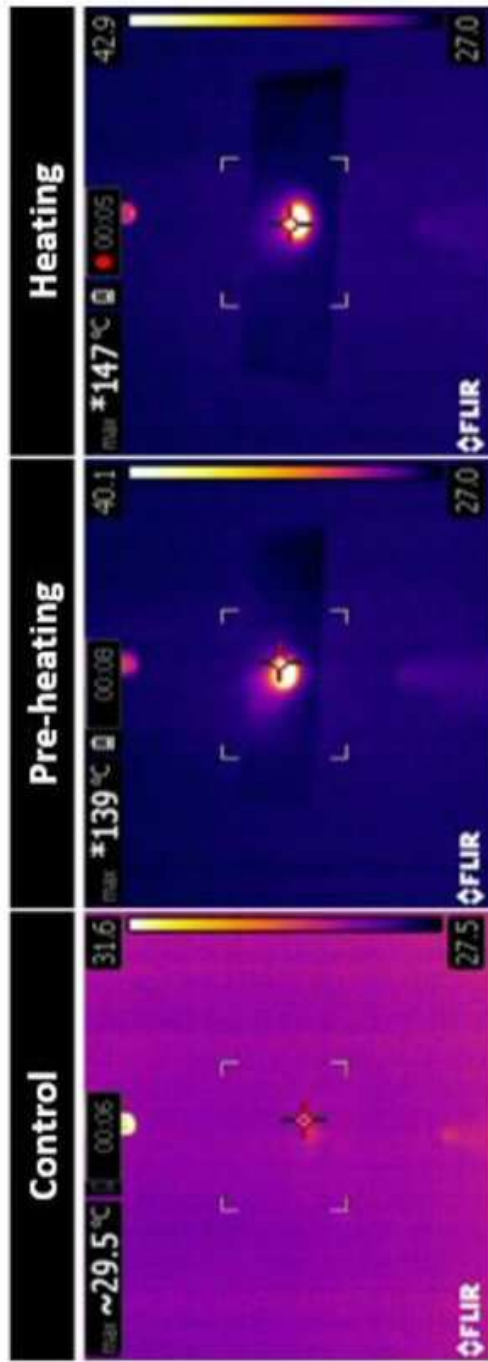
도면3a



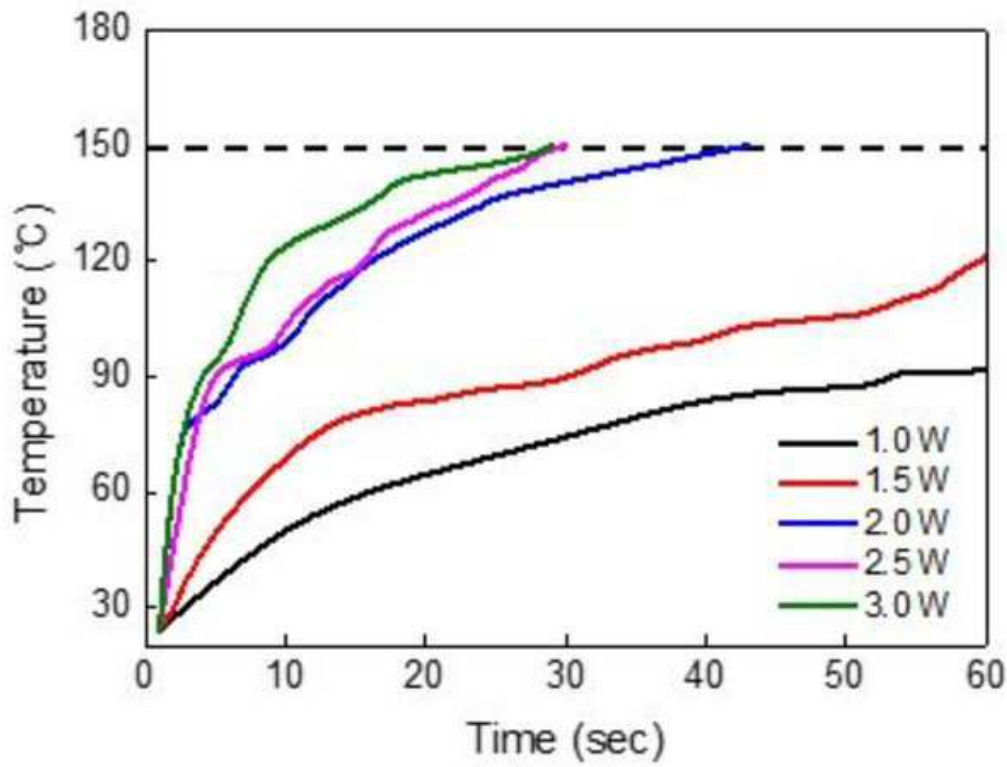
도면3b



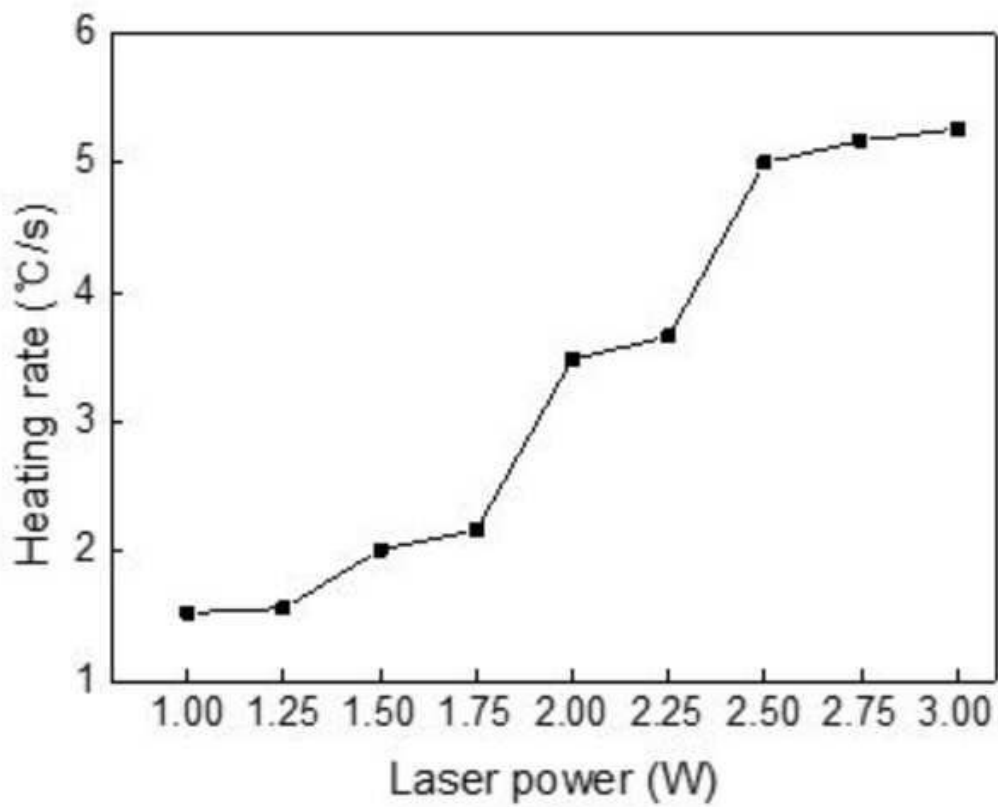
도면4a



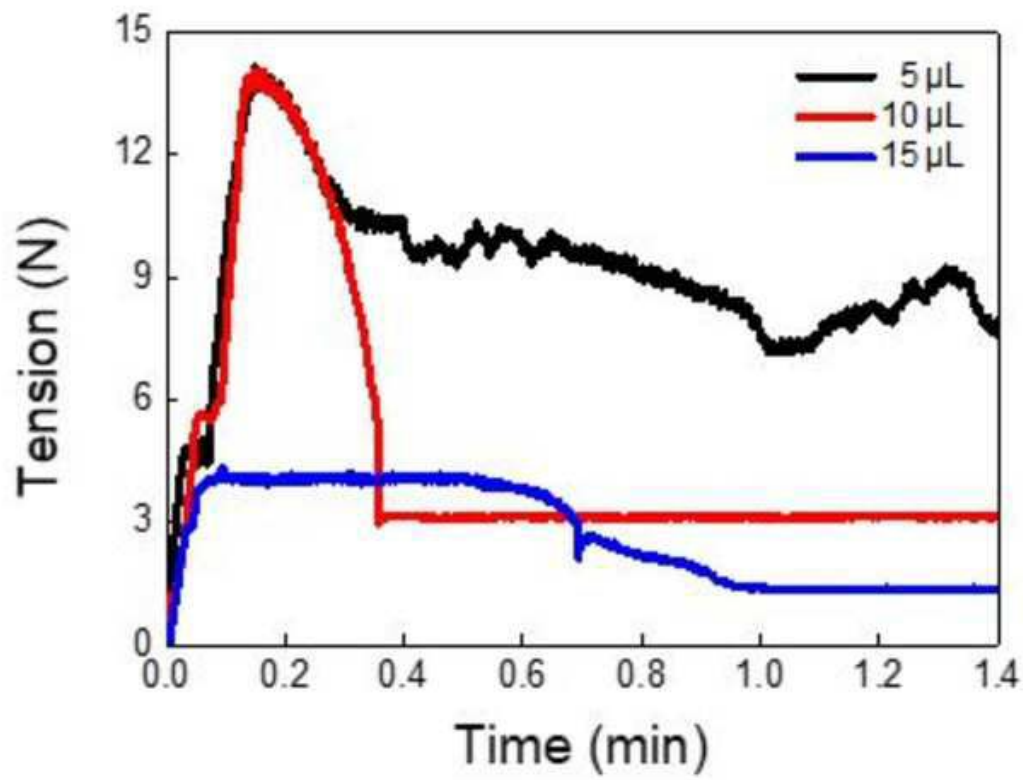
도면4b



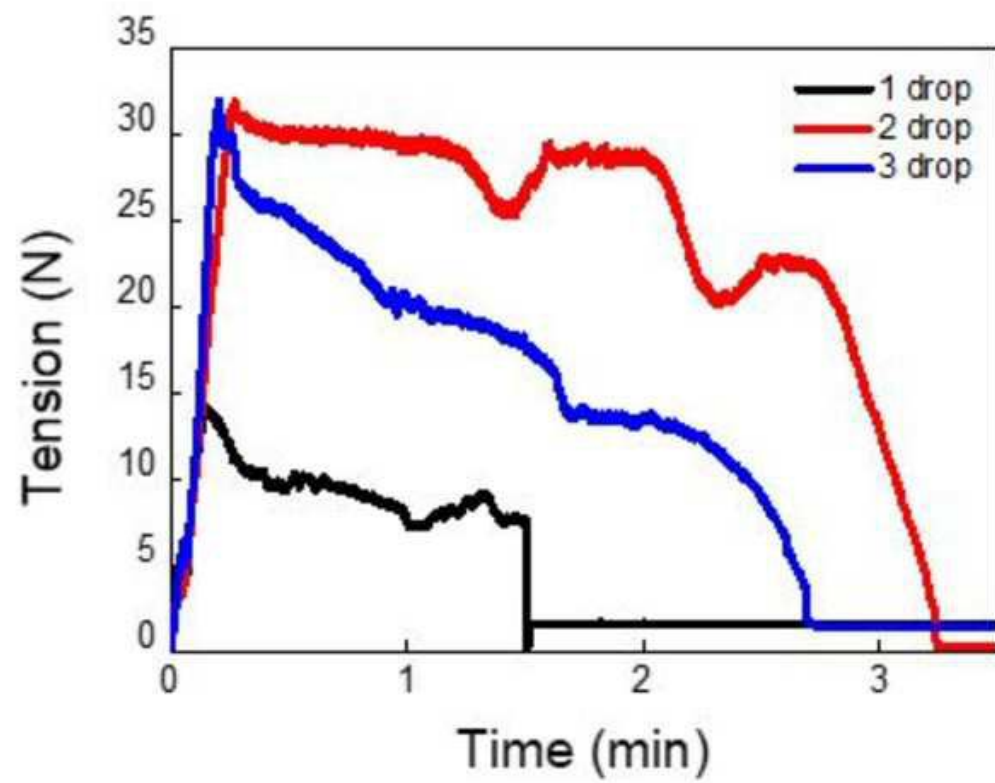
도면4c



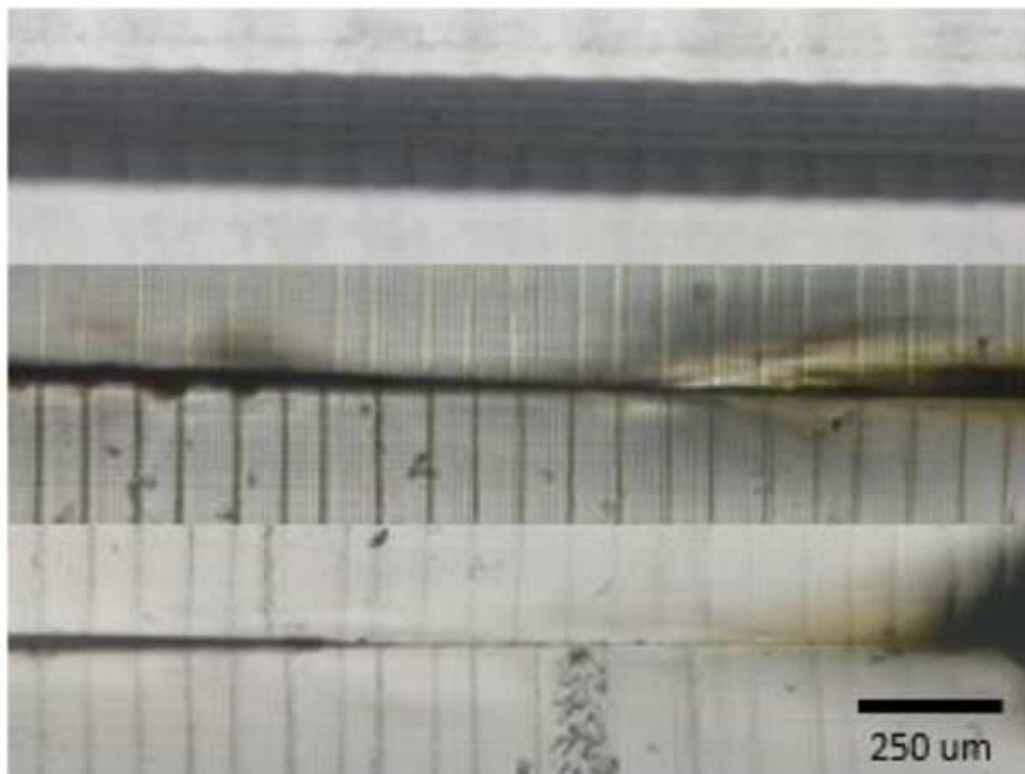
도면5a



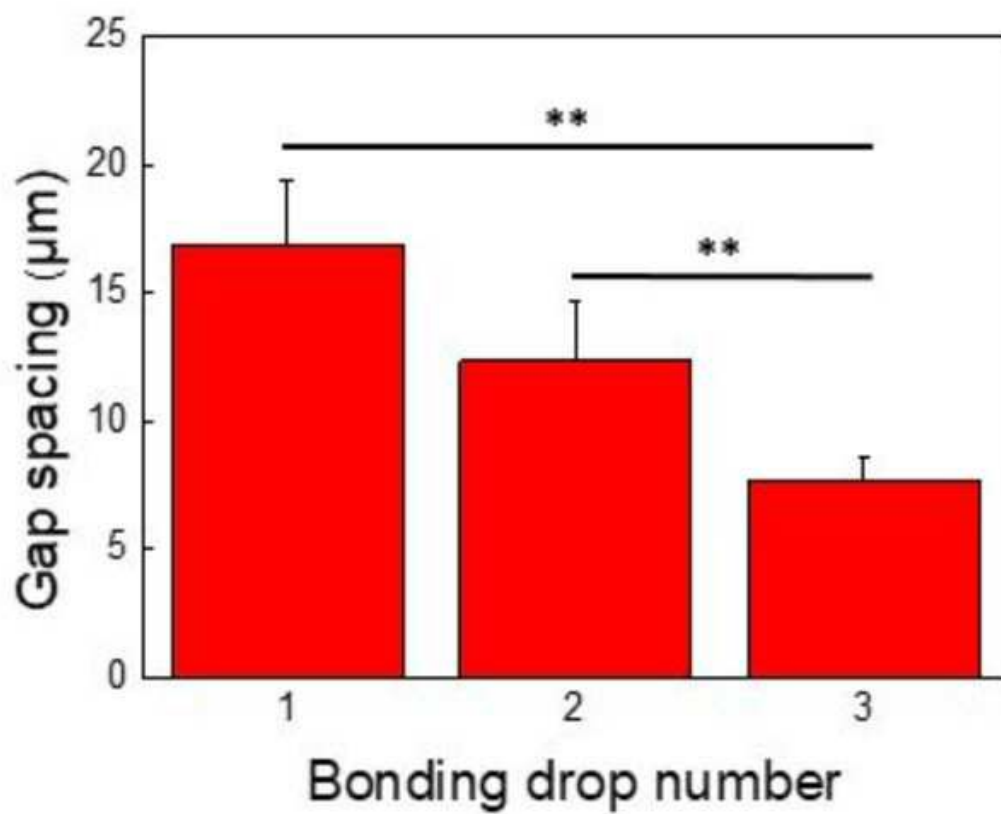
도면5b



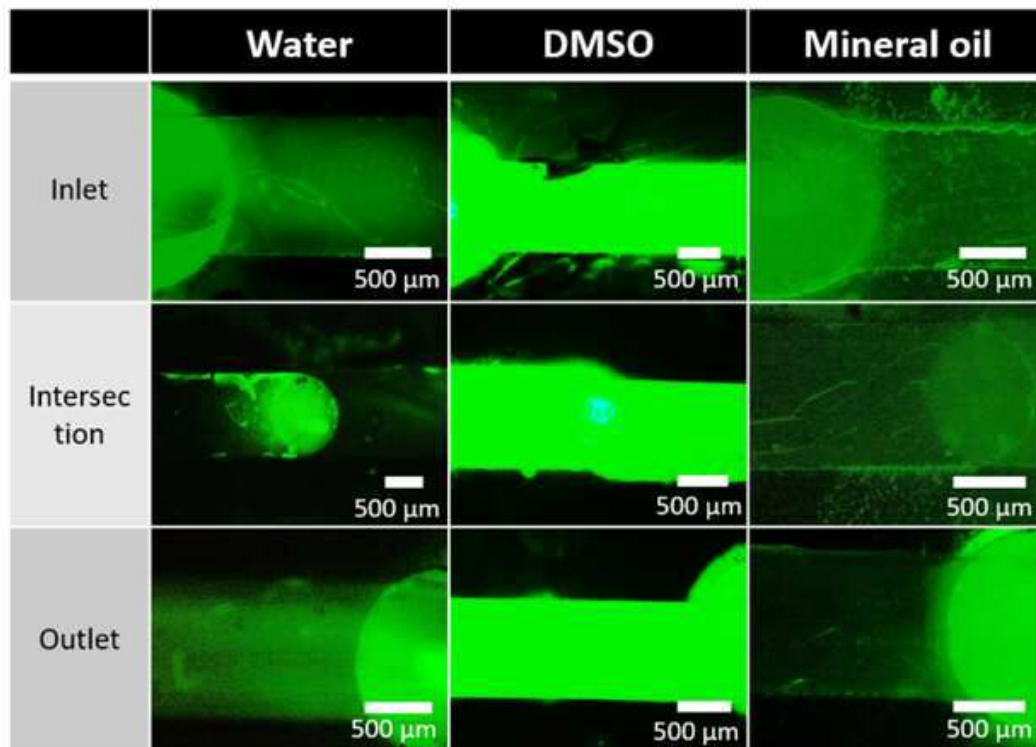
도면5c



도면5d



도면6a



도면6b

