

마이크로 프로브 기반 열전 센서 제작 기술[§]

장 원 석^{*†} · 최 태 열^{**†}

* 한국기계연구원 나노역학연구실, ** 북텍사스대 기계에너지공학과

Fabrication of a Micro-thermoelectric Probe

Won Seok Chang^{*†} and Tae Youl Choi^{**†}

* Dept. Nano Mechanics, Korea Institute of Machinery and Materials

** Dept. Mechanical and Energy Eng., Univ. North Texas, Denton, TX

(Received May 20, 2011 ; Revised August 22, 2011 ; Accepted August 25, 2011)

Key Words : Micro Pipette(마이크로 피펫), Temperature Sensor(온도센서), Seebeck Coefficient(열전계수), Micro/Nano Device(미세 소자)

초록: 마이크로 수준에서의 온도측정을 위하여 유리 피펫 기반의 프로브형 온도센서를 제작하였다. 이를 이용하여 정밀도 ± 0.1 K 를 가지는 온도측정 보정 실험을 수행하였다. 본 연구에서 제작한 방식은 저온의 용융점을 갖는 솔더합금(Sn)을 피펫에 내부에 주입하고 외부에 니켈(Ni) 코팅을 하여 열전대를 제작함으로써 저비용의 프로브형 온도센서를 구현하였다. 제작된 센서 팁 끝단의 지름은 5 μm 에서 30 μm 로 피펫을 가열하여 당기는 방식으로 프로브 끝단의 크기를 조절하였다. 제작된 온도센서는 챔버 내에서 정밀하게 제어된 온도 조절기를 사용하여 보정하였으며, 이를 통하여 얻어진 열전계수의 범위는 8.46 에서 8.86 $\mu\text{V/K}$ 의 값을 얻었다. 이를 이용하면 MEMS 소자, 세포, 티슈 등의 바이오 소재의 온도 및 열특성 측정용 프로브로 활용할 수 있을 것으로 생각된다.

Abstract: A novel technique for the fabrication of a glass micropipette-based thermal sensor was developed utilizing inexpensive thermocouple materials. Thermal fluctuation with a resolution of ± 0.002 K was measured using the fabricated thermal probe. The sensors comprise unleaded low-melting point solder alloy (Sn) as a core metal inside a borosilicate glass pipette coated with a thin film of Ni, creating a thermocouple junction at the tip. The sensor was calibrated using a thermally insulated calibration chamber, the temperature of which can be controlled with a precision of ± 0.1 K and the thermoelectric power (Seebeck coefficient) of the sensor was recorded from 8.46 to 8.86 $\mu\text{V/K}$. The sensor we have produced is both cost-effective and reliable for thermal conductivity measurements of micro-electro-mechanical systems (MEMS) and biological temperature sensing at the micron level.

1. 서론

미세한 부분의 물리적 측정기술은 최근 바이오, 마이크로/나노소자 및 공정 등 많은 분야에서 매우 중요한 기술 중의 하나로 많은 연구가 이루어지고 있다. 특히 바이오의 경우 개별 세포에서의 온도 측정은 암세포의 검출 및 열적치료,⁽¹⁾ 세포의 신진대사,⁽²⁾ DNA 와 단백질의 열적변성⁽³⁾ 등의 연구에서 필수적인 부분이다. 또한 전세계적으로 마이크로/나노기술의 발전과 함께 마이크로/나

노 구조체, 소재 및 소자기술과 그 특성에 관한 연구분야가 지속적으로 성장해오고 있다. 최근의 고집적 소자 및 마이크로 나노기반의 전기-기계 소자(MEMS/NEMS) 등의 연구가 진보함에 따라 마이크로/나노 소자의 설계에 있어서 각 부품간의 열적 특성을 고려하는 것은 소자의 성능과 안정성을 결정하는 매우 중요한 요소로 인식되고 있다.

마이크로 스케일에서 물리적 특성 측정에 관한 연구는 SPM(scanning probe microscopy), 초단펄스 레이저 빔 소스 등의 개발로 열적, 기계적, 화학적, 전기적, 광학적 특성을 측정하는 것이 가능해 졌다.⁽⁴⁾ 하지만 SPM 을 기반으로 하는 열적특성 측정기술은 높은 해상도의 측정이 가능하지만 MEMS 공정기술 기반으로 열전 프로브를 제작하므로 공정이 복잡하

[§] 이 논문은 2011 년도 대한기계학회 마이크로/나노공학 부문 춘계학술대회(2011. 5. 26.-27., BEXCO) 발표논문임

[†] Corresponding Author, paul@kimm.re.kr, Tae-Youl.Choi@unt.edu

© 2011 The Korean Society of Mechanical Engineers

고, SPM 장비를 사용하여 측정하고자 하는 샘플에 접근해야 하는 단점이 있다^(5,6). 또한 세포와 같이 외부의 자극에 대하여 빠르게 반응하는 바이오 샘플의 측정을 위한 연구는 많이 이루어 지지 않았다. 바이오 샘플의 측정에 응용이 가능한 유리 피펫을 이용한 온도센서 제작에 관한 연구^(7,8)가 이루어진 바 있으나 정확도와 해상도가 떨어져 의미 있는 측정결과가 얻어지지 않았으며, 제작방법에 있어서도 피펫 내에서 금, 백금과 같은 금속을 넣고 가열하여 당기는 방식을 사용하여 매우 높은 비용과 작은 열전계수(Seebeck coefficient) 값을 보였다.⁽⁹⁾ 본 연구에서는 바이오 샘플(세포, 티슈 등)에 이용할 수 있는 유리 피펫을 기반으로 마이크로 레벨에서 측정 가능한 신뢰성 있는 온도 및 열 물성 측정용 센서를 제작하였다. 제작된 센서는 보정 실험을 통한 신뢰성 테스트를 하였으며, 이를 통하여 열전계수를 구하고 온도 센서 성능 특성을 고찰하고자 한다. 또한 제작된 센서를 이용하여 마이크로 레벨에서 대기중과 물속에서 측정 가능함으로써 바이오 온도센서 적용 가능성을 살펴보았다.

2. 온도센서 제작 및 측정

2.1 마이크로 피펫 온도센서 제작기술

온도센서 제작을 위한 마이크로 피펫은 바이오 샘플, 세포, 티슈 등에 삽입이 용이하도록 보로실리케이트(borosilicate) 재질의 피펫을 사용하였다. 사용된 피펫은 외경 1.5 mm, 내경 0.86 mm의 크기를 가지고 있으며, 피펫풀러(pipette puller, P-97, Sutter Instrument)를 사용하여 끝단 직경을 조절하였다. 당겨진 피펫은 수 마이크로 에서 수십 마이크로의 팁 길이를 가지며 끝단에서 당겨지지 않은 피펫까지의 길이는 5~7 mm로 작은 경사각을 갖는 마이크로 피펫을 형성하였다.

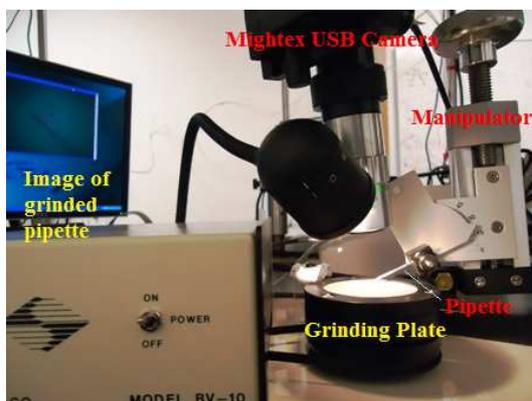
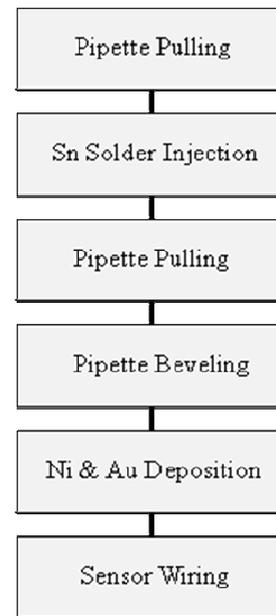
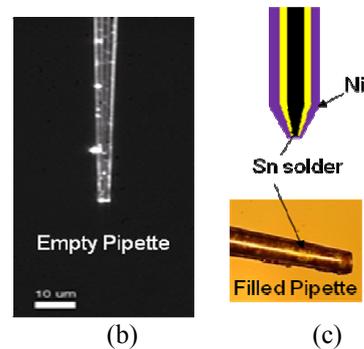


Fig. 1 Photograph of micropipette beveling setup

당겨진 피펫의 내부에는 300 °C의 용융점을 갖는 주석(Sn)합금 솔더를 국부적으로 가열하여 사출성형 방식으로 삽입하였다. 이를 위하여 솔

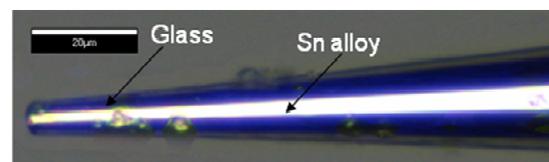


(a)



(b)

(c)



(d)



(e)

Fig. 2 (a) Flow chart of Fabrication step of micropipette thermoelectric sensor and photo images : (b) an empty pipette after pulling, (c) schematic outline and photography of the filed pipette with Sn solder alloy and nickel coated by PVD, (d) a pipette after beveling, (e) a prototype micropipette thermoelectric sensor with cold junction

더 금속을 주입하고자 하는 피펫의 윗부분에 일정 힘을 가하여 누르고 피펫 윗부분의 솔더를 국부적으로 가열하는 방식으로 수행하였다.

피펫의 끝단 지름을 조절하기 위하여 피펫풀러로 피펫 끝단의 인장 조건을 바꿔가며 제작하고, 주석을 주입한 피펫의 끝단에 경사각을 두고 연마하였다. 이를 위하여 Fig. 1 과 같이 두축의 마이크로 매니플레이터(manipulator)에 피펫을 고정하고 20°~30°의 경사각을 형성하였다. 연마제는 0.3 μm 크기의 알루미나를 이용하였으며, 끝단의 가공 정도를 확인하기 위하여 고배율 현미경과 USB 카메라를 이용하여 모니터링 하였다. 연마 후 피펫은 에틸알콜(ethyl alcohol)에서 초음파 세척하여 연마된 입자를 제거하였다.

열전대의 Sn-Ni 접점을 형성하기 위하여 피펫의 외부에 니켈(Ni)을 증기증착법(PVD, physical vapor deposition)의 방법으로 증착하였다. 니켈은 바이오 소스에 독성을 가지고 있으므로 세포, 티슈 등의 바이오 적용을 위하여 금(Au) 코팅을 추가로 금(Au)을 적층하여 온도 프로브를 완성하였다. 이렇게 제작된 피펫 팁의 직경은 0.1 에서 50 μm 의 범위를 갖는다.

팁의 크기에 따른 온도센서의 열적특성을 조사하기 위하여 피펫 끝단의 직경은 4 μm, 10 μm, 30 μm 의 세가지 크기로 제작되었다. 제작된 센서를 전압 측정기(voltmeter)에 연결할 때 이종 금속의 연결시 발생하는 오차를 없애기 위하여 같은 재질의 와이어로 연결하였다. 피펫의 바깥쪽은 니켈 와이어를 사용하여 피펫의 외부에 형성된 니켈부분과 에폭시로 연결하고, 피펫 내부의 솔더부분은 주석 와이어로 연결하였다. 이렇게 연결된 와이어를 구리(Cu) 와이어와 연결하여 cold junction 을 형성한 뒤 고정밀 볼트미터(Nano Voltmeter, Keithley 2182)에 연결하였다. 제작된 마이크로피펫 센서의 단계별 사진을 Fig. 2 에 도시하였다.

2.2 마이크로 온도센서 보정

제작된 온도센서를 보정하기 위하여 물로 채워진 단열상자에서 ± 0.1 K 로 제어되는 온도 조절기로 298 K 에서 312 K 로 온도를 변화시켜 가며 센서의 전압 값을 측정하였다. 전압변화에 대한 정확한 온도측정을 위하여 정밀 디지털 온도계를 제작된 마이크로 피펫센서와 함께 챔버에 넣어 동일한 곳에서 온도와 전압 데이터를 동시에 측정하였다.

측정 시 측정부의 온도 차에 대한 오차를 방지

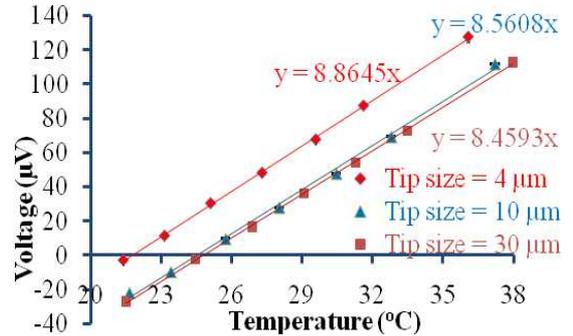


Fig. 3 Calibration results of the sensors for varying tip diameters with 4, 10 and 30 μm produced with the same PVD condition

하기 위하여 cold junction 부분을 일정온도 (297.5 K)로 상온보다 약간 높은 온도로 유지시켜, 와이어 연결 부에서의 이종 금속 결합에 의한 추가적인 열전대 효과를 차단하였다. 이때 측정된 온도와 전압의 관계를 Fig. 3 에 나타내었다. 측정된 최소 전압의 편차는 0.018 μV 로 온도로 전환할 경우 0.002 K 이하의 분해능을 갖는다. 측정된 온도와 전압값을 도시한 Fig. 3 의 그래프에서 보이는 바와 같이 온도와 전압의 관계가 선형성을 유지하는 것을 볼 수 있다.

측정된 결과의 기울기가 열전계수(Seebeck coefficient)를 나타내므로 계산된 열전계수는 온도 센서 끝단의 직경 30, 10, 4 μm 에 대해서 각각 8.46, 8.56, 8.86 μV/K 와 같다. 이는 벌크(bulk)의 재료에서 갖는 열전계수보다 작은 값을 나타낸다. 이것은 증기 증착 된 매우 얇은 금속 층의 특성에 의한 것으로 식 (1)에서 나타난 바와 같이 결정 내에서 자유전자가 이동할 때 매우 얇은 금속 층의 경우 불순물의 존재가 전자의 이동을 방해하는 영향력이 커지기 때문인 것으로 설명된다.⁽⁸⁾

$$S = \frac{\pi^2 k^2 T}{3e\zeta} \left. \left(\frac{d \ln \lambda(E)}{d \ln E} \right) \right|_{E=\zeta} \tag{1}$$

여기서, S 는 열전 파워(thermoelectric power), k 는 볼츠만상수(Boltz constant), e 는 전하량(electronic charge), T 는 절대온도(K), ζ 는 페르미 에너지(the Fermi energy), λ 는 전자의 자유경로(the mean free path of the conduction electron), E 는 전자의 에너지이다.

이 식으로부터 S 는 페르미 에너지와 전자의 자유경로의 함수이고, 이것은 모두 재료에 포함된 불순물과 필름의 두께에 관계된 인자이므로 앞서 나타난 니켈박막과 주석의 열전대 값이 벌크 재료보다 작은 현상을 물리적으로 설명해 준다.

팁의 제작시 코팅된 Ni/Au는 80 - 90 nm로 이 수준의 두께에서는 전자가 흐르는 통로에 불순물과 구조적인 보이드(void)가 형성될 가능성이 높으며,⁽⁹⁾ 이것은 전자의 이동에 주요한 저항으로 작용하여 열전계수는 낮아지고 전기적 저항을 증가하는 것으로 생각된다.

2.3 마이크로 레벨 온도측정

제작된 센서의 온도측정에 대한 검증을 위하여 Fig. 4의 시스템을 이용하여 공기 중 혹은 물속에서 가열이 가능한 레이저 광원(파워 35 mW, 파장 532 nm)으로 센서의 끝부분을 가열하면서 온도변화를 측정하였다. 센서로부터 나오는 신호를 레이저 펄스신호와 동기시킨 락인앰프(lock-in amp)를 이용하여 증폭 후 컴퓨터에 저장하였다. Figure 5는 공기 중에서 레이저를 200 ms 동안 조사하면서 측정된 시간에 따른 센서 전압의 변화를 온도로 변환하여 도시한 결과이다. 온도의 상승 시간이 레이저 빔의 조사시간과 동일하게 나타나는 것으로 제작된 마이크로 피펫 온도센서의 온도측정이 200 ms 이하의 반응 속도를 가지고 적절하게 이루어짐을 알 수 있다.

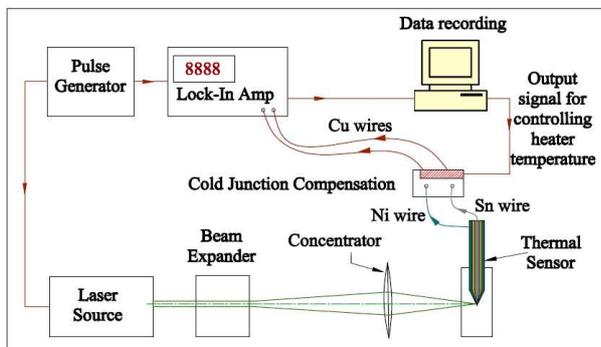


Fig. 4 Experimental setup for the characterization and verification of the thermoelectric sensor signal

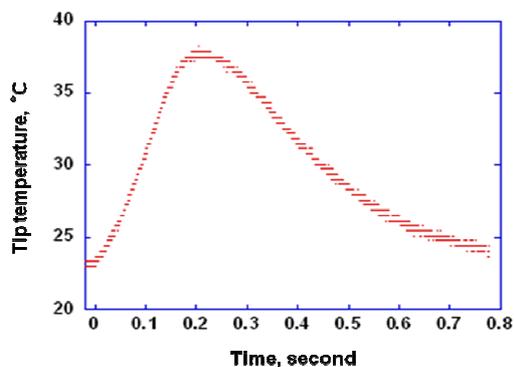


Fig. 5 A measured transient temperature profile of the sensor tip for laser irradiation time of 200 ms

이러한 측정결과를 이용하여 세포의 내부에 내부에 피펫을 주입하고 외부에 온도변화를 주면서 세포의 온도변화를 측정하거나, 레이저 조사를 이용한 기술을 하는 티슈 등에 온도를 측정함으로써 생체조직의 열적 손상 등을 연구하는데 사용할 수 있음을 알 수 있다. 또한 미세 팁으로 형성되었으므로 MEMS 구조물, 고집적 칩, 나노소재 박막 등에 정밀하게 근접시켜 국부적인 온도측정 및 열물성 측정에 활용될 수 있을 것으로 생각된다.

3. 결론

본 연구에서 저가의 재료를 이용하여 마이크로 피펫을 이용한 온도센서 제작기술을 개발하였다. 열전대의 접점은 피펫의 내부에 채워진 주석과 피펫의 외부에 열증착 방식으로 코팅된 니켈/금을 이용하여 만들어졌다. 보정을 통하여 측정된 센서의 정밀도는 ± 0.1 K이며, 열전계수는 센서 팁의 직경에 따라 8.45에서 8.86 $\mu\text{V}/^\circ\text{C}$ 로 구해졌다. 본 연구를 통하여 세포와 같은 바이오 샘플의 미세한 온도측정과 마이크로/나노 소자 및 나노소재로 형성된 매우 얇은 박막의 열적특성 분석에 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

후 기

본 연구는 21세기 프론티어연구개발사업인 나노메카트로닉스 기술개발사업과 연구재단 나노원천기술개발사업(Grant 2008-02606)의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

참고문헌

- (1) Gavrioloia, G., Ghemigian, A. M. and Hurduc, A. E., 2009, "Early Cancer Diagnosis by Image Processing Sensors Measuring the Conductive or Radiative Heat," *Proc. IFMBE*, Vol. 23, pp. 427~430.
- (2) Blask, D. E., Sauer, L. A., Dauchy, R. T., Holowachuk, E. W., Ruuhoff, M. S. and Kopff, H. S, 1999, "Melatonin Inhibition of Cancer Growth *in Vivo* Involves Suppression of Tumor Fatty Acid Metabolism via Melatonin Receptor-mediated Signal transduction Events," *Cancer Research*, Vol. 59, pp. 4693~4701.
- (3) Mandel, M., Igambi, L., Bergendahl J., Dodson, M. L., Jr. and Scheltgen, E., 1970, "Correlation of Melting Temperature and Cesium Chloride Buoyant Density of Bacterial Deoxyribonucleic Acid," *J. Bacteriology*, Vol. 101, No. 2, pp. 333~338.
- (4) Majumdar, A., 1999, "Scanning Thermal Microscopy,"

- Annu. Rev. Mater. Sci.*, Vol. 29, pp. 505~585.
- (5) Shi, L., Plyasunov, S., Bachtold, A., McEuen, P. L., and Majumdar, A., "Scanning Thermal Microscopy of Carbon Nanotubes Using Batch-Fabricated Probes," 2000, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 77, No. 26, pp. 4295~4297.
- (6) Kwon, O., Shi, L. and Majumdar, A., "Scanning Thermal Wave Microscopy (STWM)," 2003, *J. Heat Transfer*, Vol. 125, pp. 156~163.
- (7) Fish, G., Bouevitch, O., Kokotov, S., Lieberman, K., Palanker, D., Turovets I. and Lewis, A., 1995, "Ultrafast Response Micropipette-Based Submicrometer Thermocouple," *Rev Sci. Instrum.*, Vol. 66, No. 5, pp. 3300~3306.
- (8) Watanabe, M. S., Kakuta, N., Mabuchi, K. and Yamada, Y., 2005, "Micro-thermocouple probe for measurement of cellular thermal responses," *Proc. 27th Ann. Conf. IEEE EMBC*, pp. 4858~4861.
- (9) Kakuta, N., Suzuki, T., Saito, T., Nishimura, H. and Mabuchi, K., 2001, "Measurement of Microscale Bio-Thermal Responses by Means of Micro-Thermocouple Probe," *Proc. 23rd Ann. Int. Conf. IEEE EMBC*, Vol. 3, pp. 3114~3117.
- (10) Hill, D. E., Williams, L., Mah, G. and Bradley, W.L., 1977, "The Effect of Physical Vapor Deposition Parameters on the Thermoelectric Power of Thin Film Molybdenum-Nickel Junctions," *Thin solid films*, Vol. 40, pp. 263~270.
- (11) Adamov, M., Perovic, B. and Nenadovic, T., 1974, "Electrical and Structural Properties of Thin Gold Films Obtained by Vacuum Evaporation and Sputtering," *Thin Solid Films*, Vol. 24, pp. 89~100.