

최대 2 GPa 고압 환경에서 알루미늄 입자의 점화 특성 연구

이경철* · 타이라 쓰바사** · 구군모*** · 이재영* · 여재익*

Aluminum particle ignition characteristics at high pressure condition up to 2 GPa

Kyung-Cheol Lee*, Tsubasa Taira**, Goon Mo Koo***, Jae Young Lee*, Jai-ick Yoh*

ABSTRACT

The ignition of aluminum particles under high pressure and temperature conditions is studied. The laser ablation method is used to generate aluminum particles exposed to pressures ranging between 0.35 and 2.2 GPa. A continuous wave CO₂ laser is then used to heat surface of the aluminum target until ignition is achieved. We confirm ignition by a spectroscopic analysis of AIO vibronic band of 484 nm wavelength. The radiant temperature is measured with respect to various pressures for tracing of required heating energy for ignition. Then the ignition temperature is deduced from the radiant temperature using the thermal diffusion equation. The established ignition criteria for corresponding temperature and pressure can be used in the modeling of detonation behavior of heavily aluminized high explosives or solid propellants.

Key Words : Aluminum particles, Aluminum ignition, Aluminum burning, High pressure, Laser ignition

알루미늄 입자는 고엔탈피를 가진 물질로서 오래전부터 고체 추진제나 폭약과 같은 고에너지 물질의 연소 성능을 향상 시키기 위한 첨가제로 널리 사용되어 왔다. 알루미늄이 입자의 형태를 한 첨가제로 사용되어온 이유는 점화되기 위해서는 많은 에너지가 소요되고 점화가 어렵기 때문이다. 따라서 이를 극복하고자 분말의 형태를 만들어 접촉면적을 증가시켜 점화 효율을 극대화한 것이다. 이와 같이 사용되는 알루미늄 입자의 점화와 연소 특성을 알기위한 연구가 최근 진행되어 왔다. 특히 레이저를 이용한 점화 시간, 연소 시간, 점화 온도 측정 등의 연구가 진행되고 있는데, 이중에 Marion은 외부 압력에 대한 점화 효과 연구를 수행하였으며, 외부 압력은 입자의 점화 온도 및 점화 지연 시간과 관계가 없으며, 점화 온도는 압력이 변해도 일정하다는 결과를 도출하였다[1]. 하지만 Marion의 실험은 압력 챔버를 이용한 외부 압력 조건 0.1~4 MPa로 고에너지 물질이 폭발 할 때 발생하는 압력에 비교하여 매우 낮은 영역이다.

알루미늄이 혼합된 폭약이 폭발하면 먼저 폭굉

파가 발생하여 방출 된 후 알루미늄 입자가 뒤를 이어 방출된다. 이때 입자는 고온 고압의 환경에 노출되는데, 이 같은 환경에서의 알루미늄 점화 연소 특성에 대한 연구가 요구되고 있다.

본 연구에서는 Nd:YAG 레이저를 이용한 레이저 삭마 기법을 이용하여 폭발시 발생하는 폭굉파와 입자 방출 현상을 모사하였으며, 방출된 입자에 지속적인 열원을 공급하기 위해 CO₂ 연속 레이저를 이용하여 조사하였다. 이 때 점화와 연소 현상을 초고속 카메라를 이용하여 가시화하여 펄스레이저에 의해 발생한 플라즈마와의 차이를 비교하였으며, 알루미늄 점화와 연소를 확인하기 위해 분광기법을 이용하여 AIO 생성을 확인 하였다. 또한, 여러 압력 환경에서의 점화 온도와 연소 시간을 측정하여 고압 환경에서의 알루미늄 입자 점화 온도와 연소 특성을 조사하였다.

펄스 레이저를 이용한 레이저 삭마 기법은 마이크로/나노 크기의 입자를 생성하기 위해 널리 활용되어 왔다. 레이저 삭마 기법을 이용한 알루미늄 입자의 생성 과정을 살펴보면, 펄스 레이저가 알루미늄 표면에 집광되어 조사되면, 삭마가 발생하여 알루미늄이 기화되고, 플라즈마가 발생한다. 그리고 삭마시 발생하는 압력에 의해 액적화 된 알루미늄 입자들이 외부로 방출된다. Figure 1은 산란 기법[2]을 이용해 레이저 삭마시 생성된 알루미늄 입자 방출을 확인하고자 수

* 서울대학교 기계항공공학부

** Hokkaido University

*** University of Maryland College Park

† 연락처자, jjyoh@snu.ac.kr

TEL : (02)880-9334 FAX : (02)-882-1507

행한 가시화 실험의 개략도와 가시화 이미지이다. 레이저 삭마에 의한 알루미늄 입자 생성 실험에 사용된 펄스 레이저는 1064 nm 파장의 Nd:YAG 레이저이며, 출력은 0.1~1 J 이고 직경 1 mm로 집광하여 사용하였다. Figure 1의 가시화에 사용된 광원은 532 nm 파장의 펄스 레이저이다. 가시화용 532 nm 펄스 레이저는 삭마용 1064 nm 펄스 레이저와 시간차이를 두고 방출된 입자 위로 조사되고, 입자들에 의해 산란된 빛은 카메라로 들어가 이미지를 형성하게 된다.

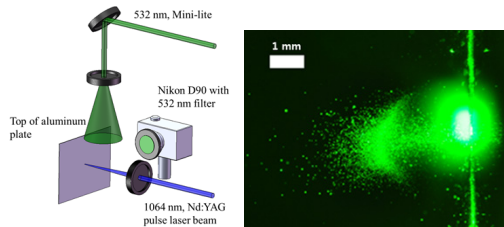


Fig. 1 A visualization scheme of micro/nano-aluminum particle generation and ejection (a) and the image of ejected aluminum particles at 25 μ s after 0.1 J pulsed irradiation (b).

Figure 1의 오른쪽 사진은 이와 같은 방식으로 삭마 레이저 0.1 J 조사후 25 μ s가 지나고 방출된 입자의 분포를 가시화한 것으로, 레이저 삭마에 의해 생성된 알루미늄 입자들은 조사면에 수직 방향으로 분출되어 사방으로 퍼져나가는 것을 확인 하였다.

알루미늄 레이저 삭마시 발생하는 현상중 하나는 레이저에 의해 폭굉파와 충격파가 발생하고 이때 내부는 고압이 형성된다[3]. 그리고 뒤이어 입자들이 방출된다. 이는 알루미늄 입자가 혼합된 폭약이 폭발하였을 때, 폭굉파가 먼저 발생하고 뒤이어 입자들이 방출되는 현상과 매우 유사하다. 알루미늄 레이저 삭마시 발생하는 압력을 알아보기 위해 다음 식 (1)을 이용하였다[4].

$$P = 1.18 \left(\frac{A}{Z} \right)^{1/3} \left(\frac{I}{10^{14} \text{ W/cm}^2} \right)^{2/3} \times 10^3 \text{ [GPa]} \quad (1)$$

여기서 A는 알루미늄 원소 무게로서 26.98이며, Z는 평균 이온화 정도(average degree of ionization)로 220이고, I는 조사 에너지의 방사 조도다. 삭마 레이저의 출력 범위 0.1~1 J을 직경 1 mm로 집광하여 조사시 발생하는 압력을 위의 식을 이용하여 계산해 보면, 발생하는 압력의 범위는 약 0.35~2.2 GPa 이다.

레이저 삭마 기법으로 고압의 환경에서 발생한 알루미늄 입자에 10.6 μ m 파장의 CO₂ 연속 레이

저를 조사하여 고온의 환경을 동시에 제공함으로써 생성된 입자의 점화를 발생시킨다.

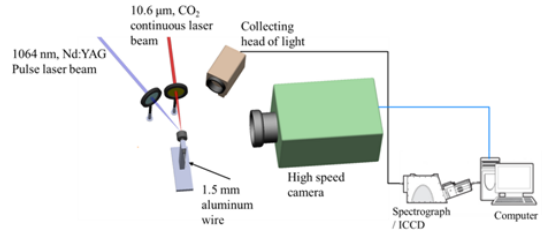


Fig. 2 Schematic of ignition of aluminum particles under high pressure (via pulsed laser) and temperature environment (via CO₂ continuous wave laser).

Figure 2는 고온 고압 환경에서 알루미늄 입자 점화를 모사한 실험 개략도이다. CO₂ 연속 레이저의 출력 범위는 30~330 W이며, 직경 1 mm로 집광하여 조사하면, 5000~9300 K의 복사 온도를 발생 시킬 수 있다. 실험에서는 알루미늄 입자의 점화와 연소를 초고속 카메라를 이용하여 관측하였다. 또한 레이저 조사 시 발생하는 빛중 알루미늄이 방사하는 빛을 분광기로 검출하여 알루미늄 연소의 중간 산물인 AlO 종이 생성될 때 방출하는 484 nm 파장을 측정함으로써 고온 고압 환경에서 알루미늄의 점화를 확인하고 연소 시간을 측정하였다[5~7].

펄스 레이저와 CO₂ 연속 레이저를 같이 조사하게 되면 초기에 발생한 플라즈마에 의해 입자의 점화를 유관으로 확인하기 어려우며, 발생한 빛이 플라즈마인지 알루미늄 점화에 의한 것인지 판별하기 어렵다. 따라서 펄스에 의해 발생하는 플라즈마의 차이를 확인해야 한다. Figure 3은 0.26 J의 삭마용 펄스 레이저만 조사하였을 경우 발생하는 플라즈마(a)와 330 W CO₂ 연속 레이저만 조사 할 때 발생하는 빛(b), 그리고 0.26 J 펄스 레이저와 CO₂ 레이저를 같이 조사하였을 때 발생하는 플라즈마와 알루미늄 입자 플룸 연소시 발생하는 빛을 초고속 카메라로 촬영한 결과이다. 그리고 분광기를 이용하여 AlO 종의 생성 파장인 484 nm를 추적한 것이다. 펄스 레이저만 조사한 경우(a) 초기 발생한 플라즈마는 3 μ s 이 후 급격히 작아지고 점점 소진되어 150 μ s에 거의 소멸 된다. 그리고 CO₂ 레이저만 조사한 경우(b)에는 약한 점과 같은 빛을 방출하지만 연소시 발생하는 강한 빛을 방출하지는 못한다. 하지만 펄스 레이저와 CO₂ 레이저를 같이 조사한 경우(c) 150 μ s에서도 여전히 빛이 플라즈마 혹은 연소시 발생하는 빛이 지속적으로 방출 되는 것이 확인되었다. 발산된 빛을 분광기를 이용

하여 AIO 종의 생성 파장인 484 nm 파장의 relative intensity ratio를 시간에 대해 측정하였다. 펄스 레이저만 조사한 경우(a) 발생한 AIO는 브레이크다운이 발생하여 생성된 플라즈마에서 알루미늄 원소가 재구성 되면서 순간적으로 발생하는 산화 현상으로서 입자 연소라고 보기에는 소진되는 시간이 매우 짧고, 특히 10 μs 이후 급격히 소진되어 150 μs에는 모두 사라진다. 하지만 CO₂와 펄스 레이저를 같이 조사한 경우(c)에는 AIO가 서서히 생성되어 11 μs에 최고에 도달하고 이후 지속적으로 유지가 되는 것이 확인되었다. 즉, 생성된 알루미늄 입자가 지속적으로 연소하며 AIO를 생성하는 것이며, 초고속 카메라의 결과에서 관측된 방출 빛은 알루미늄 연소에 의해 발생하는 것임을 나타낸다.

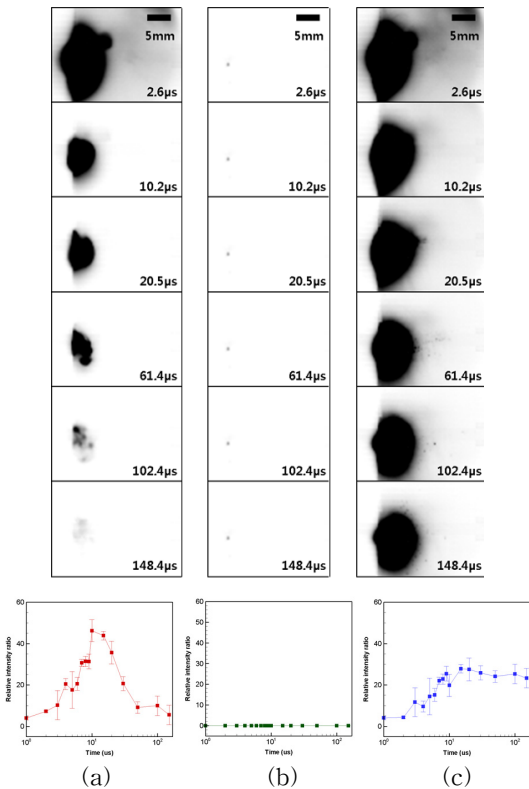


Fig. 3 The b/w inverted emission images of ignition (Upper) and measured relative intensity ratio of AIO band-484 nm (Lower) for each system setup: (a) Pulsed laser only, (b) CO₂ laser only, (c) Combined pulsed laser and CO₂ laser.

알루미늄의 상태방정식을 보면, 알루미늄의 녹는점은 대기압에서는 960 K 이고, 2 GPa에서는

1100 K 으로 증가한다[6]. 이러한 증가 추세는 알루미늄의 기화 온도가 고압에서 증가하는 것을 의미한다. 즉, 고압 환경에서 점화 온도에 영향을 준다는 것을 알 수 있다.

식 (1)에 의해 산출된 압력과 CO₂ 레이저에서 발생하는 복사 온도를 이용해 압력 대비 점화 복사 온도를 산출 할 수 있다. 또한 본 연구에서 직경 1.5 mm의 와이어 형태의 알루미늄을 이용하였으므로, 1-D semi-infinite surface analysis를 수행하여 점화시 표면의 온도를 다음과 같은 식으로 간략히 산출 할 수 있다[8].

$$T(0,t) = T_0 + \frac{2q_0''(\alpha t/\pi)^{1/2}}{k} \tag{2}$$

여기서 T 는 점화 온도 이며, $q_0''(W/m^2)$ 는 레이저 조사 에너지이고, α, k, t 는 각각 확산계수, 알루미늄의 열전달 계수, 그리고 레이저 조사 시간이다.

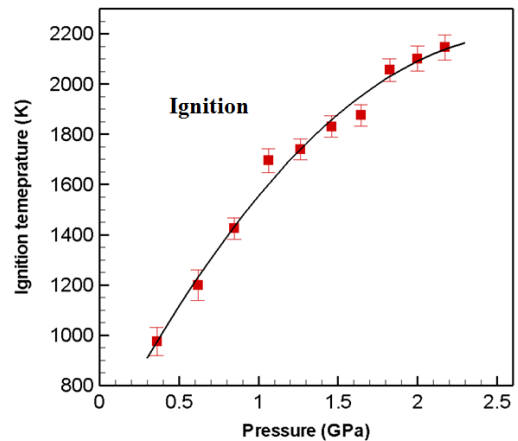


Fig. 4 Dots are calculated from experimental results and black line is a fitting line.

Figure 4는 고압 환경 조건에서 측정된 알루미늄의 복사 점화 온도바탕으로 식 (2)를 이용해 계산한 점화 온도 결과이다. 점화 온도는 0.3 GPa에서 975 K이고, 2.2 GPa에서 2150 K으로 약 2배 정도 증가하는 것을 볼 수 있다. 이로부터 압력이 증가 할 수 록 점화 온도 또한 증가하는 것을 알 수 있다.

알루미늄 입자 플룸의 연소 시간에 대한 압력의 효과를 보기 위해 분광기법을 이용하여 AIO 생성 시간을 측정하였다. 다음 Fig. 5는 2000 K의 점화 온도에서 압력에 대한 연소 시간을 측정 한 결과이다. 여기서 왼쪽 위에 표기된 결과는 Glumac[9] 이 0.8 ~ 3.2 MPa의 저압에서 측정 한 80 nm 크기의 알루미늄 입자의 연소 시간을

측정한 결과이다. Glumac 결과에 따르면 알루미늄 입자의 연소 시간은 2000 K 이상의 점화 온도에서는 압력에 대한 효과가 매우 미미하여 연소 시간에 영향을 미치지 않는다[].

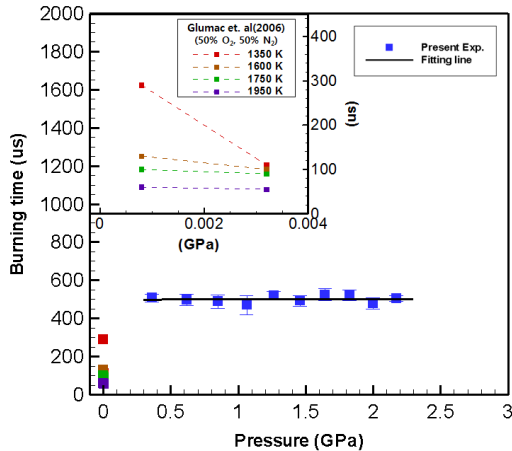


Fig. 5 Measured burning time of aluminum particle at 2000 K. Symbol represents experiments, fitted through a line.

실험에서 생성된 알루미늄 입자의 주요 크기는 80 nm와 3 μm 크기이고 2000 K의 점화 온도에서 0.3~2 GPa 환경에서 연소 시간이 측정되었다. 연소 시간을 Fig. 5에서 나타난 것과 같이 400~500 μs 로 일정한 것으로 관측되었다. 이는 3 μm 의 알루미늄 입자의 연소 시간이 약 500~600 μs [7, 10]인 것을 감안 할 때 타당한 결과이다.

본 연구에서는 최대 2 GPa의 고압 환경에서 알루미늄 입자의 점화와 연소 특성을 살펴보았다. 펄스 레이저를 사용한 알루미늄 삭마시 고압 환경에서 발생하는 입자를 CO_2 레이저를 이용해 점화 시켜 알루미늄의 점화 온도를 추정하였으며, 분광기법을 이용하여 입자의 연소 시간을 측정하였다. 결과에 따르면 수 GPa에 해당하는 고압 환경에서는 1) 많은 에너지 혹은 높은 점화 온도가 요구되며, 2) 2000 K이 넘는 점화 환경에서는 연소 시간이 더 이상 압력에 영향을 받지 않고 일정하다. 이러한 점화 특성은 알루미늄이 많이 포함된 고에너지 물질의 폭발 현상에서 알루미늄 점화 기준을 제공 할 수 있다.

후 기

본 연구는 고압충격 폭발현상 해석기법 특화연구실의 HH-5과제와 서울대학교 항공우주신기술

연구소(IAAT)를 통해 교육과학기술부의 우주기초원천기술개발 사업(National Space Lab.)으로부터 지원받아 수행되었습니다.

참고 문헌

- [1] M. Marion, C. Chauveau, I. Gokalp, "Studies on the ignition and burning of levitated aluminum particles", Combustion Science and Technology, Vol. 115, 1996, pp.369-390.
- [2] J. Koch, S. Schlamp, T. Rosgen, D. Fliegel, D. Gunther, "Visualization of aerosol particles generated by near infrared nano- and femtosecond laser ablation", Spectrochimica Acta Part B, Vol. 62, 2007, pp. 20-29.
- [3] C. H. Kim, J. J. Yoh, "Surface chemical reaction of laser ablation aluminum sample for detonation initiation", Journal of Applied Physics, Vol. 109, 2011, 093510.
- [4] R. E. Kidder, "Application of lasers to the production of high-temperature and high-pressure plasma", Nuclear Fusion, Vol. 8, 1968, pp. 3-12.
- [5] Y. Shoshin and E. L. Dreizin, "Particle combustion rates in premixed flames of polydisperse metal-air aerosols", Combustion and Flame, Vol. 133, 2003, pp.275-287.
- [6] R. J. Gill, S. Mohan, and E. L. Dreizin, "Sizing and burn time measurements of micron-sized metal powders", Review of Scientific Instruments, Vol. 80, 2009, 064101.
- [7] A. A. Abdel-Hafez, M. W. Brodt, J. R. Carney, and J. M. Lightstone, "Laser dispersion and ignition of metal fuel particles", Review of Scientific Instruments, Vol. 82, 2011, 064101.
- [8] E. M. Hunt, K. B. Plantier, M. L. Pantoya, "Nano-scale reactants in the self-propagating high-temperature synthesis of nickel aluminide", Acta Materialia, Vol. 52, 2004, pp. 3183-3191.
- [9] T. Bazyn, H. Krier, and N. Glumac, "Combustion of nanoaluminum at elevated pressure and temperature behind reflected shock wave", Combustion and Flame, Vol. 145, 2006, pp.703-713.
- [10] R. J. Gill, C. Badiola, and E. L. Dreizin "Combustion times and emission profiles of micro-sized aluminum particles burning in different environments", Combustion and Flame, Vol. 157, 2010, pp. 2015-2023.