

입자대전원리의 세라믹 분말입자 부착을 증가에의 응용

황 정 호

Application of Particle Charging to Enhance Deposition of Flame-Synthesized Ceramic Materials

Jungho Hwang



- 황정호(연세대 기계공학과)
- 1961년생
- 열 및 연소공학을 전공하였으며, 세라믹 분말합성, CVD 등에서의 고온합성공정과 폐기물소각 등과 같은 환경측면에서의 열적문제에 관심을 가지고 있다.

I. 머리말

연소시 발생하는 고온가스의 특성을 이용하여 SiO_2 , SiC , TiO_2 , TiC , Si_3N_4 , Al_2O_3 등의 세라믹 분말입자들을 합성하는 기술에 대한 요구가 최근 산업체를 중심으로 늘어나고 있다. 연소를 이용한 합성방식 중 특히 화염을 이용한 방식은 현재 연구가 활발히 이루어지고 있으며 그 추세는 증가되고 있다. 화염 합성방식은 투자한 자본에 비해 생산효율이 높기 때문에 세라믹 분말입자의 저렴한 대량생산이 가능하다는 경제적인 장점 외에도 다음과 같은 공학적인 연구측면에서의 장점을 갖고 있다.

- (1) 분말입자의 순도가 높다.
- (2) 입자의 크기가 균일하다.
- (3) 화염의 조건을 변화해줌으로써 입자 크기조절이 용이하다.
- (4) 입자 한개 한개가 서로 밀집해 있는

정도가 약해서 화염 합성방식 후에 실제로 일상생활에 쓰이는 고성능, 고밀도의 세라믹제품을 만드는 공정이 용이하다.⁽¹⁾

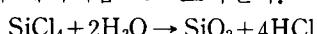
여러 종류의 세라믹 분말입자들이 그 필요성에 따라 합성되고 실생활에 이용되고 있으며 그 응용범위에 따라서 다양한 입자크기가 요구되고 있다. 예를 들어 페인트의 원료로 사용되어온 TiO_2 와 유동가시화를 위해 널리 쓰이는 Al_2O_3 은 최근 각광받고 있는 미소입자 합성기술(ultrafine nanoparticle technology)연구의 모델입자로서도 사용되고 있고,⁽²⁾ 실리카(SiO_2)는 광섬유(optical fiber)의 모재(preform) 합성공정의 원료가 되는 중요한 입자이다. 이와 같이 화염에서 형성된 세라믹입자들의 크기와 특정타겟으로의 부착률을 통제, 조절함은 제품의 생산성에 큰 영향을 미치는데 이 글에서는 세라믹분말입자의 한 예로서 실리카를 선정하여 지금까지 실리카입자 부착률증가에 관하여 수행되

어 온 연구결과를 간략히 소개하고자 한다. 먼저 현재 실리카 입자부착을 기본 메커니즘으로 하는 광섬유 모재합성방식에 대해 언급한 뒤, 기존의 입자대전(particle charging) 원리와 그 응용 예를 소개하고, 이 원리를 이용하여 모재합성공정에서 실리카부착율을 증가시키는 응용방법에 대하여 논하기로 한다.

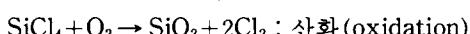
2. 광섬유 모재 합성에서의 실리카부착

광섬유에 대한 일반적인 설명과 어떠한 공정과정을 거쳐서 생산되는가에 대해서는 그간 본 학회지를 통하여 소개된 바가 있으므로 본 절에서는 광섬유 모재합성방식의 근간이 되는 실리카 입자부착 메커니즘에 대하여 간략히 언급하고자 한다. 자세한 내용은 참고문헌(3,4)을 참조하길 바란다.

여러 모재합성공정 중 outside vapor deposition(OVD) 방식과 vapor axial deposition(VAD)방식은 대형 모재제조가 가능하여 생산성이 높기에 최근들어 국내외에서 많은 연구가 수행되고 있다. OVD방식은 미국 AT&T와 corning work 등에서, VAD방식은 일본과 국내의 대한전선 등에서 연구와 생산이 이루어지고 있다. 이들 방식의 성능을 결정짓는 중요인자 중 하나가 토치의 설계인데,⁽⁵⁾ 일반적인 경우 토치는 여러개의 동심원을 갖는 원관으로 형성되어 있다. 이 토치의 중앙부분에서 SiCl_4 등의 화학물질을 분사하고 그 주위로 불완전 화학반응을 방지하기 위해 Ar, N₂, He 등의 가스를 주입하며 그 바깥으로 연료(H₂ 또는 CH₄)와 산소를 분사하면 베너 근처 연소구역에서의 화학반응으로 약 직경 20nm 정도의 구형상의 SiO₂ 주 입자(primary particle)들이 형성된다. 이 때의 화학반응은 다음과 같은 두 개의 메커니즘으로 표시된다.⁽⁶⁾



: 가수분해(hydrolysis)



이들 형성된 실리카입자들이 가스유동장을 따라가며 충돌(collision), 유합(coalescence) 그리고 응집(coagulation)과정을 거치면 궁극적으로 직경 0.2 micron 정도의 주 입자덩어리.aggregate가 형성된다.⁽¹⁾ 이 현상은 그림 1에 자세히 묘사되고 있다.

이와 같이 가스유동장을 따라서 입자형성과 성장과정을 거친 실리카입자들은 유동장내에 존재하는 특정타겟으로의 부착을 하게 되고 부착을 못한 입자는 대기 중으로 방출된다. 입자를 타겟에 부착시키는 주요 메커니즘은 열영동(thermophoresis)으로서 이는 미세한 입자가 온도구배가 있는 기체 중에 있을 때 그 입자와 기체분자와의 운동량의 교환으로 온도가 높은 곳에서 낮은 곳으로 입자가 이동하여 부착하는 현상을 말한다. 이 열영동속도는 다음과 같이 표시된다.

$$v_T = -\nu K_T \frac{\nabla T}{T} \quad (1)$$

여기서, T 는 기체온도이며, ν 는 기체의 동

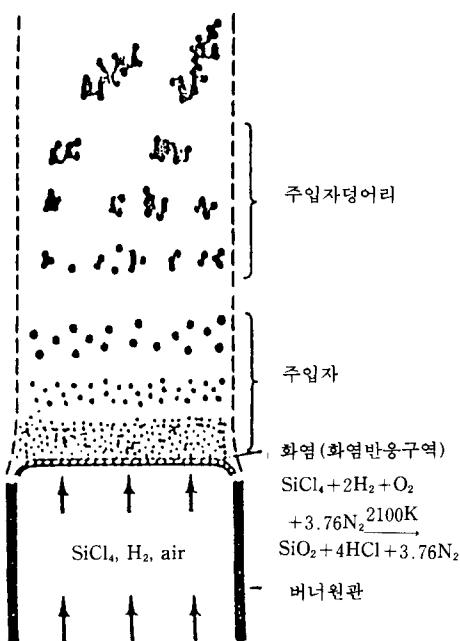


그림 1 화염 내에서 입자형성 및 성장

점성계수이고 K_t 는 열영동계수로서 입자크기 및 물성치, 그리고 주위 기체의 물성치에 의존하는 값이다. 따라서 부착성능을 파악하기 위해서는 타겟 온도분포와 화염 내의 온도장 및 유동장의 해석이 중요하다. 일반적인 열영동이론은 참고문헌 (7)에, 특히 연소 가스 내 입자의 열영동에 대해서는 참고문헌 (8,9)에 상세히 설명되어 있다. 부착된 실리 카입자들은 시간이 지남에 따라 두꺼운 다공층(porous layer)을 형성하게 되는데 여기에 토치와 타겟의 조건을 변화시켜 주고 첨가제를 가함에 따라 원하는 광섬유모재가 얻어지게 된다. OVD와 VAD방식에서의 열영동으로 인한 입자부착에 관한 연구는 많은 연구 진에 의하여 수행되어 왔으며,^(10~16) 부착률과 부착효율 증진, 그리고 고품질의 다공층 모재를 얻기 위해서는 앞으로도 많은 연구가 필요할 것이다.

3. 입자대전원리와 응용 예

입자대전현상은 주어진 상황에 따라 우리가 원해서 발생하는 경우와 원하지 않는데도 발생되는 경우로 나눌 수 있다. 먼저 산업체에서 생성되는 분진입자 제거를 위해 현재 많이 쓰이는 정전집진기(electrostatic precipitator)는 공기 중에 많은 전하체를 얻기 위해 코로나방전(corona discharge)을 일으켜서 입자대전을 인위적으로 발생시키는 것으로 전자의 경우에 속하며, 클린룸 안에서의 반도체 제조공정에서는 웨이퍼주변에 걸리는 고전압으로 인하여 근처 공기 중의 먼지입자들이 대전된 후 웨이퍼에 부착되어 원하지 않는 표면오염을 초래하므로 후자의 경우에 속한다. 입자가 화염 내에서 대전되는 경우에는 상황에 따라 전자와 후자에 모두 해당될 수 있다.

3.1 정전집진기

먼저 정전집진기 원리에 대하여 알아보면

다음과 같다. 방전극(주로 가는 와이어)에 고전압이 부과되면 방전극 근처에는 전기장 세기가 상당히 크므로 이곳을 지나는 전자들은 높은 전기이동성 때문에 고속으로 가속되어 주위의 기체분자와 충돌하여 분자의 외곽 전자를 방출하게 하고 양이온과 자유전자를 생성시킨다. 생성된 전자들은 같은 과정을 반복하여 코로나방전 영역 내에 상당량의 전자와 양이온들을 생성시키는데 이런 현상을 전자폭발(electron avalanche)이라고 한다. 만약 방전극이 음이면 전자는 접지극(입자부착타겟)으로, 양이온은 방전극으로 이동하고, 방전극이 양이면 반대가 된다. 양코로나 방전의 경우는 코로나영역을 벗어난 양이온이 입자와 만나서 입자에 부착되어 입자의 대전현상을 일으키며, 반대로 음코로나방전인 경우 코로나영역을 벗어난 전자들은 그 근방에서 전기장 세기가 약하기 때문에 분자들을 이온화시킬 만큼 충분한 에너지를 가지지 못하므로 주위의 분자들과 만나 음이온을 생성시키며 생성된 음이온이 입자의 대전현상을 일으킨다. 이와 같이 방전영역 바깥, 즉 입자부착타겟 근방을 지나는 분진입자들은 이온들의 불규칙한 열운동(random thermal motion)이나 입자주위에 형성된 전기력 선을 따라 이동하는 이온들끼리의 충돌로 인하여 대전이 된다. 전자의 경우를 확산대전(diffusion charging)이라고 하며 주로 크기 $0.1\mu\text{m}$ 이하의 입자에 대해 해당되는 경우이고 후자는 전기장대전(field charging)이라고 하며 주로 $1\mu\text{m}$ 이상의 입자에 해당되는 경우이다. 이렇게 대전된 입자에는 전기장 내에서의 정전기력(주로 coulomb force)이 작용하게 되므로 입자의 운동이 Stokes 영역 내에서 이루어지는 경우 다음과 같은 전기영동(electrophoresis) 속도로 운동하게 된다.

$$v_E = \frac{C_s q E}{6\pi r_p \mu} \quad (2)$$

여기서, q 는 입자의 전하량이고, E 는 전기

장 세기, r_p 는 입자반경, μ 는 기체점성계수를 나타낸다. C_s 는 Cunningham 마찰계수이고 이는 참고문헌 (17)에 설명되어 있다. 따라서 전기장세기와 입자전하량에 대한 자세한 정보가 전기영동속도를 계산하는데 필수적임을 알 수 있다. 이와 같이 분진제거에 이용되는 정전집진에 대한 연구가 최근에 국내에서 활발히 진행되고 있다.^(18~20) 정전집진기의 원리와 대전된 입자의 유동운동에 대한 자세한 설명을 위해서는 참고문헌 (21)과 (22)를 각각 참고하기 바란다.

3.2 마이크로오염

입자대전과 관련되는 다른 예로는 전자산업의 반도체 제조공정 중 클린룸에서의 마이크로오염(microcontamination)이 있는데 생산공정시 웨이퍼주변에 걸리는 고전압으로 인하여 공기 중에 존재하는 입자가 대전되어 웨이퍼표면으로 전기영동이동을 하게 된다. 이를 억제하기 위한 한 방법으로 웨이퍼표면온도를 웨이퍼주변 공기온도보다 높게 하여 열영동효과를 줌으로써 전기영동을 상쇄시키는 연구가 현재 활발히 진행되고 있다.^(23~25)

3.3 화염

위에서 언급한 대전현상들이 주로 상온이나 상온보다 조금 높은 온도상태에서 이루어지는 반면 화염에서의 대전현상이 갖는 특색은 고온에서의 대전이라 하겠다. 화염은 연료/산화제의 연소로 인한 화학이온화(chemical ionization), 또는 고온에서 쉽게 이온화되는 물질을 화염에 첨가함으로써 나타나는 열이온화(thermal ionization)에 의하여 그 연소특성에 따라 여러 종류의 이온과 전자를 형성시킨다. 입자가 고온(약 1500K 이상)의 화염 내에 존재할 때에는 앞에서 언급한 확산대전현상 외에 가열된 입자로부터 전자가 방출되어(thermionic emission) 입자가 양이온으로 대전되려는 경향이 있다(전자방출대전). 또한 코로나방전에서 전자와 이온을 인

위적으로 얻는데 비하여 화염에서는 연소로부터 자연발생적으로 전자와 이온이 형성됨이 또 다른 특색이라 하겠다. 이 경우에도 외부에서 가하는 전압의 극성과 세기를 조절함에 따라 전자와 이온의 분포와 움직임이 결정되어 전기장대전이 발생할 수 있음은 물론이다. 전자방출대전, 확산대전, 전기장대전현상의 상호관계는 대전시간, 전자/이온수밀도, 입자 수밀도, 입자크기, 전기장세기, 대전온도, 입자유전상수(dielectric constant) 등의 여러 인자에 좌우되는데, 입자들간의 상호관계를 무시한 희박조건(dilute condition)의 경우의 화염내 실리카대전에 관한 이론적 연구는 참고문헌 (26, 27)에 자세히 설명되어 있다. 또한 화염에서의 입자대전현상 자체에 대한 연구는 아니지만, 연소성능을 전기적으로 조절하거나, 입자대전을 일으켜서 입자형성(nucleation and formation), 성장(growth), 부착(deposition)을 통제, 조절하는 연구가 과거에 활발히 수행된 적이 있다.^(28~31)

4. VAD/OVD공정에의 입자대전응용

지금까지 광섬유 모재합성공정에서의 실리카부착 메커니즘과 입자대전에 대한 일반적인 사항들을 알아보았다. 그러면 이제는 모재합성공정 중 현재 우리가 관심을 가지고 있는 VAD/OVD 방식에 대한 입자대전원리의 응용이 과연 입자부착률 증가에 어떠한 영향을 미치는가에 대하여 알아보기로 하자. 이미 언급한 대로 VAD/OVD 방식에서의 주 입자부착 메커니즘은 열영동이며 이 효과는 입자부착타겟 근방에 형성되는 열경계층(thermal boundary layer) 내에서의 온도구배에 기인한다. 이때 만약에 타겟근방에 전기포텐셜구배(전기장)가 존재하는 전기경계층(electrical boundary layer, Debye sheath)이 형성이 되고 이 영역 내에서 입자가 대전된 상태로 존재한다면 대전된 입자가 타겟으

로 움직이는 전기영동효과로 인하여 부착률은 증가될 것이다. 그러므로 원하는 전기영동효과를 얻기 위해서는 전기장이 충분히 강해야 하고 전기경계층 두께가 충분히 두꺼워야 하며 입자대전정도가 커야 하는데 그러기 위해서는 화염 내에 충분한 양의 전하체가 존재해야 한다. 즉 화염온도가 충분히 높지 않으면 이온과 전자의 수밀도(number density)가 충분하지 않으며 따라서 입자대전효과 역시 미미하게 된다.

그러므로 입자부착에 관한 실험을 하기 이전에 화염의 열 및 유동특성과 외부에서 가해주는 전기특성을 분석해서 이해하는 것이 필수적이다. 화염의 열 및 유동특성은 토치에서 분출되는 연료와 산소의 혼합비(equivalence ratio)와 이들의 유량(flow rate)에 크게 좌우된다. 복잡한 토치의 구조(뒤에 설명) 때문에 토치에서 분출되는 가스들간의 상관관계변화가 화염성능에 직접적으로 영향을 미치게 된다. 화염내 전기특성은 외부에서 가해주는 전압의 세기와 극성, 전극의 선정 및 위치 등에 큰 영향을 받으므로 이에 대한 세심한 배려가 필요할 것이다.

따라서 본 연구에서는 화염성능분석 인자로서 온도분포와 전압(전기장)분포를 채택하여 측정하였고 토치에서 분출되는 여러 가스들의 유량조합이 이들 분포에 미치는 영향을 알아보았다. 본 연구수행의 궁극적인 목적이 입자부착시의 열영동 외에 전기영동 효과가 얼마나 큰가를 실험적으로 측정함과 동시에

이 과정에 대한 이론적인 모델링을 하는 데 있으므로 화염온도분포를 가능한 한 균일하게 유지시키는 실험조건을 구한 뒤 이 조건 하에서 전기장분포를 측정하였고 입자부착실험을 수행하였다. 실험을 통하여 얻은 입자부착률은 외부에서 가해준 직류전압 세기에 크게 의존함이 입증되었고 실험과 병행하여 수행된 모델링 계산결과와 비교 검토 되었다.

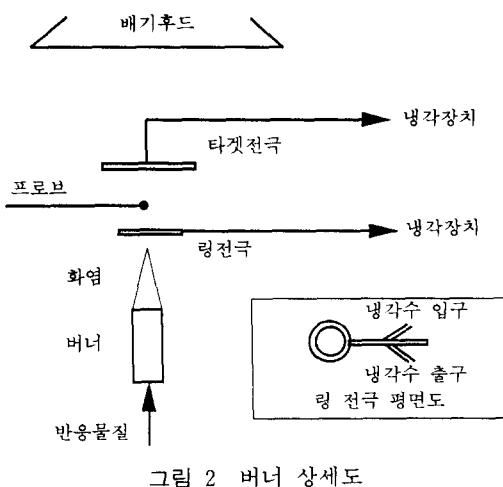
다음에는 먼저 본 연구를 위해 설계, 제작된 실험장치를 소개한 뒤 온도분포와 전압분포 측정 실험결과를 설명하겠다. 그리고 난류 선정된 화염 및 전기조건에 대하여 수행된 입자부착 실험에 대해 논하기로 한다.

4.1 실험장치

모든 측정은 길이 22.86cm, 직경 34.93mm의 토치를 통해 형성되는 확산화염(diffusion flame)에서 이루어졌다. 토치의 자세한 개요는 표 1과 그림 2에서 설명되고 있다. 토치 각각의 원심관에 질량유동 조절계(mass flow controller)가 연결되어 있고 각각의 가스는 상온(21°C), 상압(0.83기압)에서 토치로 주입된다. 메탄가스는 원관 3, 5, 7로 주입되고 산소는 원관 4, 6, 8로 주입된다. 중심원관으로는 산소가 버블러(bubbler) 시스템에서 얻어지는 SiCl_4 가스와 함께 주입된다. 불완전 화학반응으로 인해 형성된 실리카입자들이 토치에 부착됨을 방지하기 위해서 원관 2로는 질소가 주입된

표 1 버너 상세표

링 번호	내경(mm)	외경(mm)	링 간격(mm)	관 길이(mm)	운반되는 가스
1	3.34	4.76	3.34	228.6	O_2 w/ 혹은 w/o SiCl_4
2	6.53	7.94	0.89	203.6	N_2
3	10.21	12.7	1.14	184.26	CH_4
4	16.05	17.46	1.67	164.91	O_2
5	20.45	22.23	1.6	145.57	CH_4
6	24.38	25.4	1.08	126.22	O_2
7	27.66	28.58	1.08	106.88	CH_4
8	31.62	34.93	1.52	87.53	O_2



다. 또 토치 상단부로부터 3.5cm 하단부에
는 과열로 인한 토치원관들의 흡을 방지하기
위해 놋쇠링이 끼워져 있다. 이 놋쇠링에는
많은 원형구멍이 뚫려 있는데 그 구조는 3.5
cm 길이와 연관해서 토치 밖으로 분출되는
가스들이 완전 발달 유동(fully developed
flow)을 이루도록 설계되었다.

그림 3은 전체 실험장치 개요를 나타내고
있다. 토치 상단부로부터 12.74 cm 높이에
두께 2.6 mm 스테인레스철 재질의 원형디스크

크가 화염 유동방향과 수직하게 위치해 있는
데 이 디스크는 입자부착 실험시 타겟으로
이용되며 외부지지대에 고정되어 있다. 디스
크로부터 9 mm 하단위치에는 외경 30 mm,
내경 20.48 mm의 스테인레스철 재질의 링이
설치되어 있는데 디스크와 링은 직류전압이
가해졌을 때 전극으로 이용된다. 링을 전극
으로 사용하는 이유는 가스유동장을 간섭하
는 효과를 최소화하기 위해서이다. 디스크와
링은 고온의 화염 내에 위치하므로 그 재질
이 높은 온도까지 견디는 스테인레스철로 만
들어졌다 하더라도 특정 화염 조건하에서는
녹을 위험이 있고, 비록 고온에는 견디더라도
높은 표면온도 때문에 두 전극으로부터
전자가 방출(thermionic emission)되어 두
전극 사이의 전하분포가 복잡하게 될 가능성
이 크며, 또한 고압이 걸렸을 때 전기와해
(electrical breakdown) 현상이 발생할 수 있
으므로, 냉각수를 디스크와 링 주위에 순환
시켜 이와 같은 원하지 않는 현상을 방지하
였다. 냉각수로는 전하를 포함하지 않은 상
온상태의 물을 이용하여 전류가 냉각수 저장
탱크로 흐르지 않게 하였다. 그림 3은 또한
화염 내에서의 온도와 전압의 2차원 측정을
위한 프로브 이송장치를 보여주고 있다.

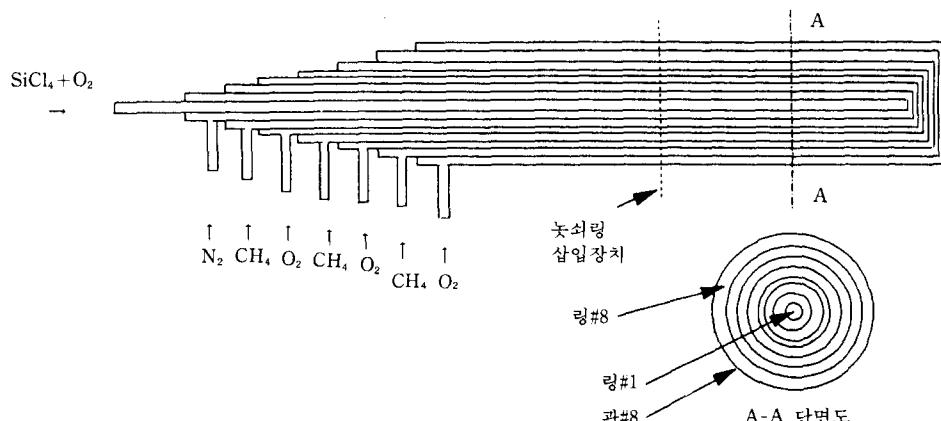


그림 3 실험시스템 상세도

4.2 온도분포실험

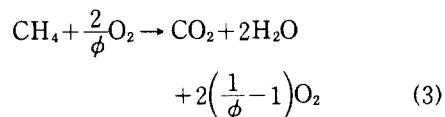
온도분포 측정은 먼저 디스크와 링이 설치되지 않은 개방된 화염(open flame)조건에서 수행되었으며 토치의 8개의 원관에 주입되는 가스들의 혼합비와 유량에 따른 상관관계가 화염온도 분포에 미치는 영향을 해석하였다. 그런 뒤에 디스크와 링이 화염 내에 존재할 때 온도분포의 변화를 측정하였다. 모든 온도측정은 열전대(thermocouple)를 이용하여 계측되었고 실리카입자가 없는 청정화염상태(clean flame)에서 수행되었다. 실리카입자의 경우는 비록 화염 내에 존재하더라도 고온에서 많은 복사열을 방출하는 탄소 매연입자와는 달리 그 복사열이 주변유동장 및 온도장에 미치는 영향이 무시할 정도로 작음이 실험적, 해석적으로 입증되었고, (32~34) OVD/VAD공정시 화염 내에 많은 수의 실리카입자가 존재하지만 (타겟 근처에서의 수 밀도~ $10^9/\text{cm}^3$) 전체 입자질량과 화염ガ스질량의 비(mass loading)가 0.1보다 작아서 온도분포에 큰 영향을 주지 않기에, (9) 측정된 청정화염상태에서의 화염온도분포, 특히 화염유동장하류 열평형구역(thermal equilibrium, 그림 4 참조)에서의 온도분포는 실제 OVD/VAD 공정시의 화염온도분포를 반영한다고 할 수 있다. 이를 입증하는 또 다른 방법으로 입자부착타겟 근방에서의 온도분포가 토치중심원관으로 산소가스와 함께 주입되는 SiCl_4 유동량(0.8 g/min)에 의한 영향을 알아보기 위해서 Stanjan⁽³⁵⁾을 이용하여 계산을 수행하였는데, SiCl_4 주입이 없는 경우와 0.8 g/min의 SiCl_4 주입이 있는 두 경우를 비교할 때 온도차이가 거의 없었다. (약 30 K)

다음에서는 우선 열전대를 이용한 온도측정 방법을 설명한 뒤 개방된 화염조건에서의 측정결과를 소개하고자 한다. 화염 내에 디스크와 링이 존재할 때에는 온도분포의 변화가 거의 없었으며 단지 이들 표면 근처에서 온도 경계층형성으로 인한 변화만이 측정되

었다. 하지만 이 경계층 두께가 약 2mm 정도로 얇기 때문에 경계층밖 벌크(bulk) 온도분포에 대한 영향은 무시할 정도였다. 자세한 실험결과에 대해서는 참고문헌 (36)을 참고하기 바란다.

4.2.1 측정방법

온도측정은 B형 열전대(Pt-6%Rh/Pt-30% Rh)를 이용하였다. 열전대를 화염 내에 위치하여 온도를 측정한 뒤 복사로 인한 열손실을 보상하여 화염온도를 계산하였다. 이 계산을 위하여 프로브 방사율(emissivity)은 온도범위 1400~2400 K에서 선형으로 0.17에서 0.22로 변화한다고 가정하였고,⁽³⁷⁾ 화염의 열전도계수는 가스들이 H_2O , CO_2 , O_2 로 구성되어 있다는 가정 아래 기체운동이론(kinetic theory)으로써 얻어졌다. 이들 기체들의 물분율을 계산하기 위하여 다음과 같은 Stoichiometric 관계식을 이용하였다.



여기서, ϕ 는 전체 혼합비이고 이는 2.06

* 전체 메탄체적유동량 전체 산소체적유동량의 비에 2.06을 곱한 값으로 표시된다.

4.2.2 결과 및 분석

토치원관 4, 6, 8에 주입되는 산소의 유동량을 7.6, 7.4, 7.35(lpm)로, 원관 2에 주입되는 질소의 유동량을 5.49(lpm)로 고정한 상태에서 원관 1의 산소 유동량과 원관 3, 5, 7에 주입되는 메탄가스 유동량을 변화시킴으로써 온도분포를 측정하였다. 측정된 값들의 허용오차(uncertainty)는 $\pm 80\text{ K}$ 이다.⁽³⁶⁾

그림 4는 원관 3, 5, 7에 주입되는 메탄가스 유동량이 각각 0.74, 1.08, 1.71(lpm)일 때 중심원관의 산소유동량의 변화가 축방향 온도분포에 미치는 영향을 보여주고 있다. 중심원관에 산소가 주입되지 않을 때에는 온

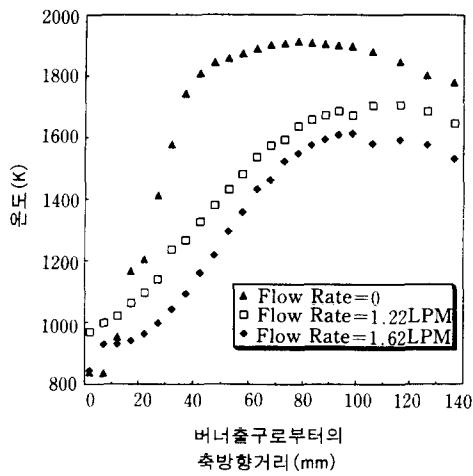


그림 4 버너중심선을 따른 축방향 온도분포

도가 급격히 증가하게 되는데 그 정도는 산소주입량이 증가함에 따라 점차적으로 줄어드는 것을 알 수 있고, 급격한 온도의 변화가 일어난 후의 온도 역시 산소주입량에 의존함을 보여주고 있다. 이 현상은 앞에서 언급한 토치 주입가스량에 근거하여 설명될 수 있는데 토치에서 분출되는 평균질량 플럭스가 $0.8 \text{ kg/m}^2/\text{sec}$ 인데 비해 중심원관에서 분출되는 산소플럭스가 0에서 $4 \text{ kg/m}^2/\text{sec}$ 로 변화함에 따라 생기는 일종의 열관성(thermal inertia)효과라 하겠다. 또 다른 의미로는 원관 3에서 분출되는 메탄가스의 양이 중심원관에서 나오는 산소를 완전연소시키기에는 불충분하다는 의미도 된다. 그러므로 축방향의 온도구배는 토치 중심선 바깥에서 형성된 연소가스들에 의해 중심선으로 침투하는 열 및 물질전달양과 토치 중심관에서 분출되는 산소의 유동량과 연관되어 결정되고 하겠다.

그림 5는 토치 중심원관의 산소분출량이 2.9(lpm)으로 고정되었을 때 몇몇 화염위치에서 토치 주입 메탄가스 유동량들의 조합이 반경방향 온도분포에 미치는 영향을 보여주고 있다. 토치원관 3, 5, 7로 주입되는 메탄

가스들의 유량은 각각 0.33, 1.08, 1.71($\phi = 0.25$), 0.74, 1.08, 1.71($\phi = 0.24$), 1.23, 1.53, 2.15($\phi = 0.4$)로 사용되었다. 측정결과, 일정 높이에서는 혼합비(ϕ)가 증가함에 따라 화염 내의 온도분포가 점점 균일하게 됨을 알 수 있었고 일정 혼합비에서는 측정위치가 높아짐에 따라 점점 균일하게 됨을 알 수 있었다. 토치의 반경이 약 15 mm이고 이 근방에서 대기와 화염이 연결되어 전단층(shear layer)을 형성함을 고려할 때 ϕ 가 0.4인 경우, 높이 12.45 cm에서의 반경방향 화염온도 분포는 거의 균일함을 보여주고 있다. 또 그림 3에 나타난 바와 같이 이 높이 근방에서의 축방향 온도분포 역시 거의 균일함을 알 수 있으므로 이 측정위치 근방에서의 온도분포는 전단층 구역을 제외하고는 일정하다고 할 수 있다.

지금까지 소개된 온도분포 결과를 좀더 효율적인 토치의 설계와 연관지어 봄이 유익할 듯 싶다. 지금까지 OVD/VAD 공정에 사용되는 토치는 화염안정성, 높은 화염온도 등을 고려하여 경험적으로 설계되었으며 저자가 아는 바로는 참고문헌 (5)를 제외하고는

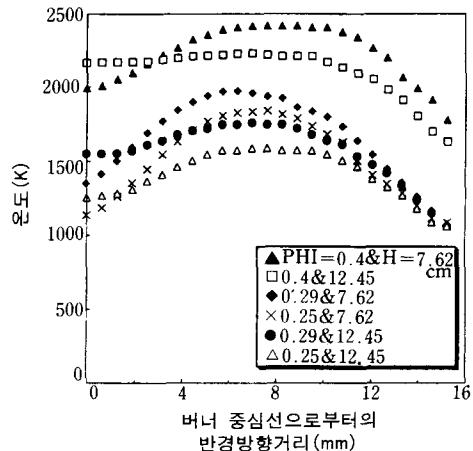


그림 5 측정높이 7.62, 12.45 cm에서 혼합비 0.4, 0.29, 0.25에 대한 반경방향 온도 분포

좀 더 효율적인 버너자체의 설계에 대한 연구는 물론, 현재 사용되고 있는 버너의 성능에 대해서도 열·유체공학적인 모델링연구는 공개되지 않은 것으로 사료된다. 실제 OVD/VAD 공정에서 실리카입자들의 화염분포가 가우시안(Gaussian)분포에 가까워서⁽¹²⁾ 대부분의 입자들이 토치 중심축선 근방에 위치함을 고려할 때, 위의 온도분포실험 결과 알 수 있듯이 토치 중심축선 근방에서의 반경방향 온도구배가 입자들의 열영동운동을 중심축선을 향하도록 이루어져 있다는 사실은 현재 사용되는 버너의 효율적인 설계를 입증하는 자료임을 알 수 있다. 하지만 화염과 대기가 만나는 전단층 근방에서의 반경방향 온도분포결과는 이 부근에 존재하는 실리카입자들을 화염 밖으로 향하게 해서 타겟으로의 부착률을 저하시킬 수 있으므로 더욱 더 성능이 좋은 토치설계를 위해서는 이 근방에 일종의 차단가스(shielding gas)를 주입하는 등의 부착률 저하방지를 위한 연구의 필요성이 있다.

4.3 전기장분포실험

전기장분포 측정은 앞절의 온도분포 측정에 이용된 화염조건에서 이루어졌다. 전기장분포를 아는 것은 전기영동 효과를 구하는데 필수적인 조건으로서 뒤에 설명할 입자부착 실험과 연관지어야 될 것이다. 먼저 앞절에서 진단된 화염조건 $\phi=0.4$ 인 경우 전기장분포가 측정되었는데 그 세기가 거의 간파되기 힘들 정도로 약했다. 또 이 조건에서 예비 입자부착실험을 수행하였는데 전기영동 효과 역시 예상했던 대로 아주 미미하였다. 따라서 화염조건을 좀 더 많은 이온과 전자를 생성시키는 쪽으로 변화시킴이 불가피하였고, $\phi=0.6$ 인 경우에 전기장분포와 예비 입자부착실험을 수행했을 때 원하는 전기영동 효과를 얻을 수 있었다. 전기장측정은 정전프로브(electrostatic probe)를 사용하여 행해졌고, 화염 내에 실리카입자가 존재함으로

써 전기장분포에 미칠 수 있는 영향은 계산결과 10% 이내로 예상되었기에,⁽³⁶⁾ 앞절의 온도측정과 같이 청정 화염조건에서 이루어졌다. 먼저 전기장측정 방법을 설명한 뒤 결과와 분석을 토론하겠다.

4.3.1 방법

전기장분포 측정은 외부에서 가한 직류전압이 있을 때 두 전극 사이의 전압분포를 먼저 측정한 뒤 전압의 구배를 구함으로써 이루어진다. 이를 위해 직경 0.01 inch, 재질 Pt-30% Rh의 정전프로브를 이용하였으며 직류전압이 타겟에 걸렸을 때 프로브를 전압계에 연결시켜서 지역전압을 측정하였다.

4.3.2 결과 및 분석

본절에서는 $\phi=0.6$ 인 경우 즉 토치원관 3, 5, 7로 주입되는 메탄가스 유동량이 0.33, 1.98, 2.6(lpm)이고 원관 1, 4, 6, 8로 주입되는 산소유동량이 1.22, 6.39, 4.81, 4.38(lpm)인 경우에 대한 전압(전기장)분포 측정결과를 소개하고자 한다. 이 때 질

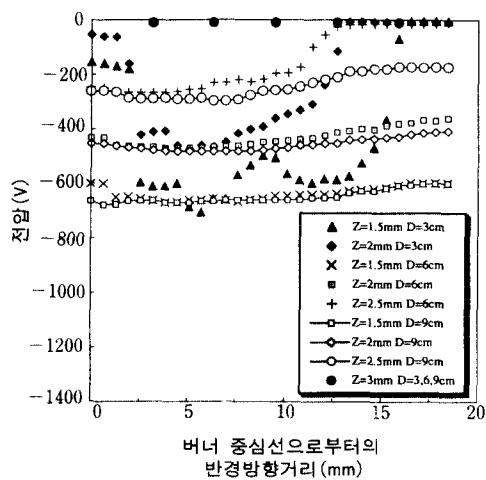


그림 6 타겟에 -1.6 kV가 걸렸을 때 3~9 cm 타겟근방에서의 반경방향 포텐셜분포(Z =타겟으로부터의 축방향거리 D =타겟 크기)

소의 유동량은 3절에서와 같이 5.49(lpm)로 고정하였다. 타겟으로는 직경 3~9 cm의 여러 디스크를 사용하였다. 다음 그림에서의 데이터는 측정치들의 평균값이고 측정오차는 약 ± 10 V이다. ⁽³⁶⁾

그림 6은 3~9 cm 타겟에 -1.6 kV가 걸렸을 때(이 때 링은 접지) 타겟 근방에서의 전압분포를 보여주고 있다. 프로브의 특정 축방향 위치에서 반경방향 전압분포가 3 cm 인 경우 불규칙적인데 비해 타겟크기가 커짐에 따라 거의 일정함을 보여주고 있고 프로브가 타겟으로부터 3 mm 떨어진 곳에서는 전압이 거의 0에 가까왔다. 따라서 타겟에 비록 고전압이 걸려 있다 할지라도 전기적 효과는 타겟 근방으로 국한되어 있고 화염의 벌크(bulk) 지역에서는 거의 그 효과가 미치지 않음을 알 수 있었다. 전기효과가 존재하는 이 구역을 전기경계층(debye sheath)이라 하는데 그림 7은 9 cm 타겟에 가한 직류전압을 변화시킴으로써 경계층두께가 변하는 정도를 잘 보여주고 있다. 그림 7로부터 양 전압이 걸렸을 때의 경계층 두께가 음전압이 걸렸을 때보다 약 2배가 두꺼움을 알 수 있다. 타겟에 음전압이 걸렸을 때는 화염 내의 양전하가 타겟으로 움직이고 양전압이 걸렸을 때는 음전하가 타겟으로 움직이는데, CH₄/O₂ 화염에서는 H₃O⁺와 CO₃⁻가 가장 대표적인 이온이라 하겠다. ^(26,38) 화염 내에 입자가 존재할 때에는 복잡한 입자대전현상으로 전하분포 역시 매우 복잡해지는데, H₃O⁺ 이온이 존재할 때 고온에서의 실리카 대전현상(unipolar charging)에 대해서는 참고문헌(27)을 참조하기 바란다.

이와 같이 타겟 근방의 전기장 두께는 가한 전압의 크기에 따라 변화하며 전압의 세기가 -1.6~1.6 kV 인 경우의 두께는 0~6 mm임을 알 수 있었다. 그림 8은 9 cm 타겟에 음전압이 걸린 경우 전기 경계층두께와 전기장세기를 보여주고 있다. 이 화염조건에서의 온도 경계층 두께가 약 2 mm 정도로

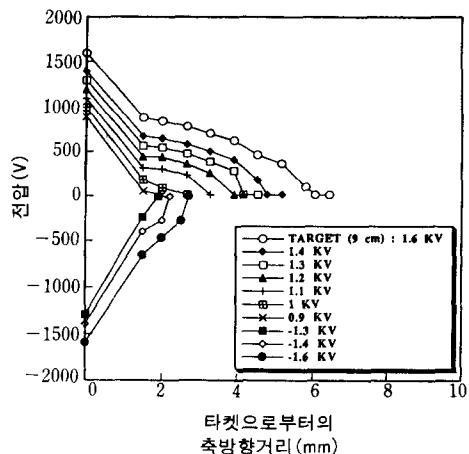


그림 7 9 cm 타겟에 가해진 전압에 따른 축방향 포텐셜 분포

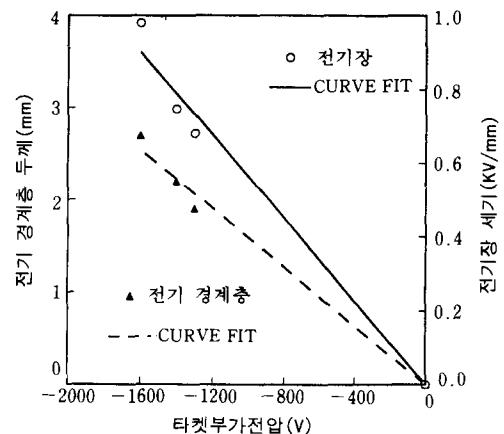


그림 8 9 cm 타겟에서의 전기경계층 두께와 전기장세기

측정되었음을 고려할 때 온도경계층에서 이루어지는 열영동으로 인한 입자부착 효과 외에 전기영동효과가 외부에서 가해주는 전압의 크기에 따라 조절될 수 있음이 검토되었다. 이 효과에 대한 실험적입증은 뒤에서 언급하기로 한다.

4.4 입자부착실험

지금까지의 실험 및 고찰을 통해 입자부착

실험을 위한 제반여전이 형성되었으므로 본 절에서는 전기영동이 입자부착에 미치는 영향에 대하여 알아보고자 한다.

모든 실험에 있어서 토치원관 1에서 토치원관 8까지 주입되는 가스유량(lpm)은 1.22, 5.49, 0.33, 6.39, 1.98, 4.81, 2.6, 4.38이었고 이로 인한 전체혼합비는 0.6이었다. 이 조건하에서의 화염 내의 이온과 전자의 수 밀도는 원하는 전기영동효과를 얻기 위해 충분했음을 이미 앞에서 언급하였다. 1.22 lpm의 중심 원관 산소 유동량은 0.8 g/min의 SiCl_4 Vapor를 화염으로 운반시켰으며 이 때의 버블러 시스템의 온도는 21°C였다. 타겟으로써 여러 직경의 디스크들이 사용되었고 하나의 타겟에 대하여 디스크와 링 사이에 가해지는 직류전압에 대한 입자부착률을 측정하였다. 부착된 입자의 무게측정을 위해 Mettler HL 52형 마이크로저울(micro balance)이 이용되었고 한 실험조건에 대하여 8번의 측정을 한 뒤 평균값과 표준편차를 계산하였다. 모든 측정에 있어서 링은 접지되었고 디스크는 전원과 연결되었다. 이렇게 전극의 극성을 결정하게 된 배경은 참고문헌(39)에 자세히 설명되어 있다.

그림 9는 타겟크기가 3 cm인 경우에 가해준 전압이 -1.6 kV에서 1.6 kV까지 변화할 때의 입자부착률 변화를 나타내고 있는데 가한 전압의 극성에 대하여 부착률이 대칭형태를 보여주고 있다. 이와 유사한 실험이 0.6 μm polystyrene latex 입자의 실리콘웨이퍼로의 부착에 관하여 수행되었는데⁽⁴⁰⁾ 그 입자부착 경향은 그림 9의 경향과 유사하였다. 여기에 고온과 상온의 차이점에 의한 가스 내의 이온의 종류와 전기이동성(mobility)의 차이가 부과전압에 연관하여 입자부착률에 미치는 영향에 대한 연구가 수행되어야 할 것이다. 그림 10은 순수한 열영동에 의한 입자부착률이 타겟크기에 따라 변화하는 정도를 보여주고 있다. 입자부착률은 타겟크기가 커짐에 따라 증가하나 단위 면적당 입자부착

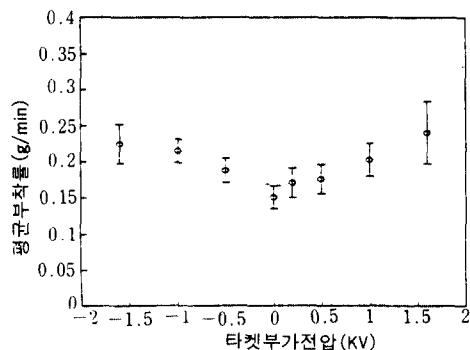


그림 9 3 cm 타겟에 가해진 전압에 따른 평균 부착률

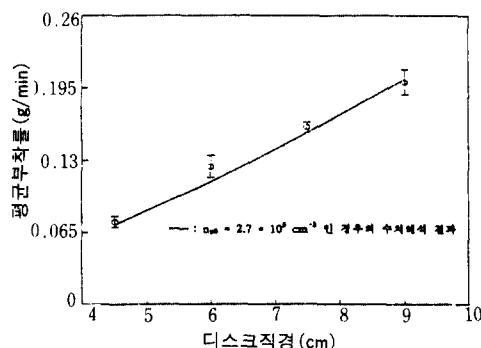


그림 10 타겟크기변화에 대한 평균부착률

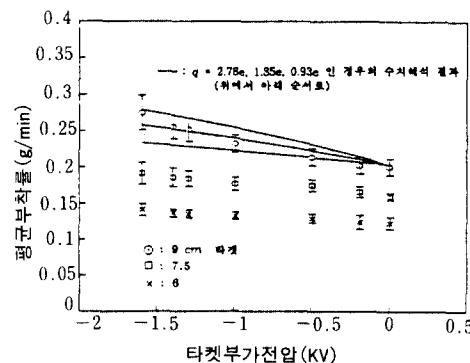


그림 11 타겟(6, 7.5, 9 cm)에 가해진 전압에 따른 평균부착률

률은 감소함에 유의해야 할 것이다. 그림 11은 6, 7.5, 9 cm 타겟에 대해 가해준 전압이 0에서 -1.6 kV까지 변화할 때의 입자부착

착률 변화를 나타내고 있는데 9 cm 타겟에 대하여 -1.6 kV 를 가했을 때 전기영동으로 인한 부착율 증가는 실리카 입자전하량이 $2.78e$ (e : 전자의 전하량)라는 가정 아래 약 35%가 되었다.

5. 맷음말

광섬유 모재제조공정인 OVD와 VAD방식에서의 입자부착 증진을 위해서 외부에서 전기장을 가해서 실리카입자를 대전시킨 뒤에 타겟으로 부착을 시키는 전기영동원리를 이용하는 방법을 소개하였다. 실험에서는 디스크형 타겟을 사용하여 타겟 근방에서의 온도, 전기장분포를 측정하였고 입자부착실험을 수행했다. 그 결과 9 cm 타겟에 -1.6 kV 가 가해졌을 때 전기영동으로 인한 부착률 증가는 열영동으로 인한 효과의 약 35%가 되었다.

참고문헌

- (1) Ulrich, G. D., 1984, "Flame Synthesis of Fine Particles," *Chem. Eng. News.* 62(8), pp. 22~29.
- (2) Eastman, J. and Siegel, R., 1989, "Nanophase Synthesis Assembles Materials from Atomic Clusters," *Research & Development*, pp. 56~60.
- (3) 박대희, 1990, "광섬유 제조과정에서의 열적문제," 대한기계학회지, 추계특집호, pp. 166~172.
- (4) 최만수, 1992, "광섬유 제조 화학증착 기술," 대한기계학회지, 제32권, 제8호, pp. 673~684.
- (5) Murata, H., 1986, "Recent Developments in Vapor-phase Axial Deposition," *J. Lightwave Technology*, LT-4(8), pp. 1026~1033.
- (6) Miller, T. J., Potkay, E. and Yuen, M. J., 1987, "Review of Chemistry and Mechanisms of Deposition for Optical Waveguide Fabrication by Vapor-phase Deposition from a Combustion Flame," *AICHE Symposium Series*, 83(258), pp. 1~11.
- (7) Talbot, L., 1981, "Thermophoresis-A Review, in Rarefied Gases," Edited by S. Fisher, Vol. 73 of *Progress in Astronautics and Aeronautics*.
- (8) Eisner, A. D. and Rosner, D. E., 1986, "Experimental and Theoretical Studies of Submicron Particle Thermophoresis in Combustion Gases," *Physico Chemical Hydrodynamics*, 7, pp. 91~100.
- (9) Rosner, D. E. and Park, H. M., 1988, "Thermophoretically Augmented Mass-, Momentum-, and Energy-Transfer Rates in High Particle Mass Loaded Laminar Forced Convection Systems," *Chemical Engineering Science*, 43(10), pp. 2689~2704.
- (10) Alam, M. K. and Mehrotra, S., 1987, "Thermophoretic Deposition of Particles in Optic Fiber Preform Fabrication," *ASME 87-HT-6*, pp. 1~7.
- (11) Alam, M. K., Graham, G., Janakiraman, V. and Greaves, J., 1990, "Numerical Analysis of Thermophoretic Transport in the OVD Process," *ASME 90-HTD-130*, pp. 67~72.
- (12) Bautista, J. R., Walker, K. L. and Atkins, R. M., 1990, "Modeling of Heat and Mass Transfer in Optical Waveguide Manufacturing," *Chemical Engineering Progress*, p.47.
- (13) Kang, S. H. and Greif, G., 1992, "Flow and Heat Transfer to a Circular Cylinder with a Hot Impinging Air Jet," *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, 35, pp. 2173~2183.

- (14) Kang, S. H. and Grief, R., 1993, "Thermophoretic Transport in the Outside Vapor Deposition Process," *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, 36, pp. 1007~1018.
- (15) Tsai, H. C. and Greif, R., 1993, "Thermophoretic Transport with Application to the Outside Vapor Deposition Process and the Vapor Axial Deposition Processes," *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, 37, pp. 257~268.
- (16) Song, Y., Choi, M. and Kang, S. H., 1993, "A Study of Heat Transfer and Particle Deposition during Outside Vapor Deposition Process," *Presented at the 6th Int. Symposium on Transport Phenomena in Thermal Engineering*, May 9-13, Seoul, Korea.
- (17) Lee, K. W. and Liu, B. Y. H., 1980, "On the Minimum Efficiency and the Most Penetrating Particle Size for Fibrous Filters," *J. Air Pollution Control Association*, Vol. 30, pp. 377~381.
- (18) 유경훈, 오명도, 이준식, 1993, "2단 정전식 집진기의 입자하전 및 포집모델 해석," *공기조화냉동공학회 93년도 학술 발표회*, pp. 130~135.
- (19) 김익생, 이재옥, 김용진, 최현호, 1993, "2단 평행판 전기집진기의 방전부 특성실험," *공기조화·냉동공학 논문집*, 제5권, 제1호, pp. 27~34.
- (20) 박석주, 김상수, 1993, "정전집진기 내의 코로나유동 가시화," *충계학술대회 논문집*, pp. 85~88.
- (21) Oglesby Jr., S. and Nichols, G. B., 1978, *Electrostatic Precipitation*. Marcel Dekker, Inc., New York.
- (22) Friedlander, S. K., 1977, *Smoke, Dust and Haze*, John Wiley & Sons.
- (23) Turner, J. R., Liguras, D. K. and Fisan, H. J., 1989, "Clean Room Applications of Particle Deposition from Stagnation Flow: Electrostatic Effects," *J. Aerosol Sci.* 20, p. 403.
- (24) Cooper, D. W., Peters, M. H. and Miller, R. J., 1989, "Predicted Deposition of Submicrometer Particles Due to Diffusion and Electrostatic in Viscous Axisymmetric Stagnation Point Flow," *Aerosol Sci. and Technol.* 11, p. 133.
- (25) Peters, M. H. and Cooper, D. W., 1990, "The Effects of Electrostatic Forces on the Thermophoretic Suppression of Particle Diffusion Deposition onto Hot Surfaces," *J. of Colloid and Interface Science*, 140(1), pp. 48~56.
- (26) Hardesty, G. M. and Weinberg, F. J., 1973, "Electrical Control of Particulate Pollutants from Flames," *14th Symposium (International) on Combustion*, pp. 907~918.
- (27) Hwang, J. and Daily, J. W., 1992, A Study of Particle Charging for Electric Field Enhanced Deposition, *Aerosol Sci. and Technol.*, 16(2), pp. 113~125.
- (28) Place, E. R. and Weinberg, F. J., 1967, "The Nucleation of Flame Carbon by Ions and the Effect of Electric Field," *11th Symp. (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, p. 245.
- (29) Lawton, J. and Weinberg, F. J., 1969, *Electrical Aspects of Combustion*, Clarendon Press-Oxford.
- (30) Weinberg, F. J., 1973, "Smokes, Droplets, Flames and Electric Fields," *Faraday Society Symposia* 7, pp. 120~132.
- (31) Katz, J. L. and Hung, C., 1991, "Initial Studies of Electric Field Effects on Ceramic Powder Formation in Flames," *23th Symposium (International) on Combustion*, p. 1733.

- (32) Allendorf, M. D. and Palmer, R. E., 1990, "Spontaneous Raman Spectroscopy in Flames Containing High Concentration of Silica Particles." *High Temperature Sci.* 26, p. 45.
- (33) Flower, W. L. and Hurd, A. J., 1987, "In Situ Measurement of Flame-Formed Silica Particles Using Dynamic Light Scattering," *Applied Optics* 26, p. 2236.
- (34) Chung, S. and Katz, J. L., 1985, "The Counter Diffusion Flame Burner: A New Tool for the Study of the Nucleation of Refractory Compounds," *Combustion and Flame*, 61, pp. 271~284.
- (35) Reynolds, W. C., 1989, STANJAN, the Element Potential for Chemical Equilibrium Analysis, Interactive Computer Programs For Chemical Equilibrium Analysis. Thermoscience Division, Department of Mechanical Engineering, Stanford University.
- (36) Hwang, J. and Daily, J. W., 1994, "Characterization of a VAD Flame Impinging on a Disk for a Study of Electric Field Enhanced Deposition," *Accepted for Publication in Experimental Thermal & Fluid Science*, 8, pp. 58~66.
- (37) Perry, R. H. and Chilton, C. H., 1973, *Chemical Engineer's Handbook*, 10-51, McGraw-Hill.
- (38) Goodings, J. M., Bohme, D. K. and Chun-Waing, 1979, "Detailed Ion Chemistry in Methane-Oxygen Flames : II. Negative Ions," *Combustion and Flame*, 36, pp. 45~62.
- (39) Hwang, J. and Daily, J. W., 1993b, "Electric Field Enhanced Deposition in Optical Fiber Preform Manufacturing," in Preparation.
- (40) Donovan, R. P., Yamamoto, T., Clayton, A. C. and Ensor, D. S., 1988, "Experimental Study of Particle Deposition on Scilicon Wafers under the Combined Effects of Electric Fields and Thermal Gradients," *9th Proceedings of International Confederation of Contamination Control Societies*, pp.37~42. ■