

## 증착 구간에서의 온도 제어에 따른 $\text{SiO}_2$ 초미립자의 증착 특성 고찰

유 수 종\* · 김 교 선\*\*

### A Study on the Deposition Characteristics of Ultrafine $\text{SiO}_2$ Particles by Temperature Control in Deposition Zone

Soo-Jong You\* · Kyo-Seon Kim\*\*

#### ABSTRACT

The deposition characteristics of ultrafine  $\text{SiO}_2$  particles were investigated in a tube furnace reactor theoretically and experimentally controlling tube wall temperature in deposition zone. The model equations such as mass and energy balance equations and aerosol dynamic equations inside reactor and deposition tube were solved to predict the particle growth and deposition. The particle sizes and deposition efficiencies of  $\text{SiO}_2$  particles were calculated, changing the process conditions such as tube furnace setting temperature, total gas flow rate and inlet  $\text{SiCl}_4$  concentration and were compared with the experimental results.

#### 1. 서 론

산업 문명의 발전과 함께 최소한의 결

점을 갖는 고기능성 파인 세라믹 제품의 수요가 급증하고 있다. 이러한 세라믹 제품의 원료가 되는 세라믹 미립자를 제조하는 방법은 에어로졸 공정을 통하여 원하는 완전한 물성을 갖는 미세한 입자를 얻을 수 있다.

\* 유수종 강원대학교 화학공학과 석사과정

\*\* 김교선 강원대학교 화학공학과 부교수

에어로졸 반응기에서는 기체 반응물을 이용하여 에어로졸 미립자를 제조할 경우의 메카니즘은 일반적으로 기체 상태의 화학 물질이 물리적 공정이나 화학 반응에 의해 과포화 상태에 도달하게 되어 분말이 제조된다.

에어로졸 반응기의 초기에는 반응 생성물의 균질 핵화(homogeneous nucleation)에 의해 입자가 형성되는 반면에 에어로졸 입자의 성장은 monomer의 응축(condensation)과 에어로졸 입자끼리의 충돌(coagulation)에 의해 일어나게 되고 기체 상에서 제조된 에어로졸 초미분체를 증착에 의해 최종 생성물을 만들 수도 있다[1].

본 연구에 사용된 에어로졸 공정 장치는 튜브형 가열로 반응기로서 반응 기체가 기상에서 반응하여 핵형성과 입자간의 충돌에 의해 초미세 입자로 성장한 후 생성된 초미세 입자가 기체 흐름이 튜브벽에 의해 냉각되는 구간에서 열영동(thermophoresis) 현상으로 튜브 내벽에 증착된다[2-4].

본 연구에서는 간략화된 튜브형 가열로 모델 실험 장치를 제작하여 증착 구간에서 균일한 분포의 증착을 위하여 pyrex튜브내를 가열, 단열, 냉각하는 방법을 사용하여 균일한 두께의  $\text{SiO}_2$  입자를 이루는 증착 특성을 고찰하였다. 이론적인 모델 연구로써 반응기 내의 전달 현상식과 에어로졸 동력학식을 고려하였으며,  $\text{SiCl}_4$ 의 전환률과 생성된  $\text{SiO}_2$  입자의 증착 효율을 계산하였다.

반응기내에서 가열로 설정 온도, 전체 기체 유량 및 초기  $\text{SiCl}_4$  농도 등의 공정 조건을 변화시키며 초미립  $\text{SiO}_2$  입자의 증착 특성 실험을 하였으며, 수치 모사에 의해 예측된 증착 효율 결과와 비교하였다. 또한 증착 구간에서 균일한 두께의 증착을 위하여 증착 구간 내부 벽온도를 조절하여서  $\text{SiO}_2$  입자의 증착 특성에 대하여 이론적 및 실험적으로 연구하였다.

## 2. 이 론

수치 모사를 위한 모델식을 세우기 위

해 튜브형 가열로 반응기에서의 열전달식,  $\text{SiCl}_4$  물질 수지식,  $\text{SiO}_2$  입자의 0차, 1차, 2차 모멘트 수지식 등을 세웠다.

에어로졸 동력학식에서는 화학 반응 속도, 에어로졸 생성 속도, 에어로졸의 충돌, 확산, 열영동 현상 등을 고려하였다. 축방향의 열전달, 물질 전달 및 자연 대류의 영향을 무시하였고, 유체 전달 현상이나 열전달 속도에 에어로졸의 영향은 없으며, 전체 반응은  $\text{SiCl}_4$  농도(C)에 대한 1차 반응으로 가정하였다[5,6,7]. 반응기 내의 기체 흐름에 대한 에너지 수지식과 반응물( $\text{SiCl}_4$ )에 대한 물질 수지식을 세우면 각각 식(1), 식(2)와 같다.

$$u \frac{\partial T}{\partial r} = \frac{\alpha}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \Delta H_{RXN} / \rho C_p \quad (1)$$

$$u \frac{\partial C}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( D_r \frac{\partial C}{\partial r} \right) - RXN \quad (2)$$

$\text{SiCl}_4$  산화 반응에 의해  $\text{SiO}_2$  입자로 생성되며 반응기 위치에 따라  $\text{SiO}_2$  입자에 대한 에어로졸 동력학식을 세우면 식 (3)과 같이 표현된다[5,7].

$$\begin{aligned} u \frac{\partial n}{\partial z} &= \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ r \left( D_b \frac{\partial n}{\partial r} + n K_v \frac{\partial \ln T}{\partial r} \right) \right\} \\ &+ \frac{1}{2} \frac{v}{v^*} \int \beta(v, v-v') n(v, r, z) n(v-v', r, z) dv' \\ &- \int_{v^*}^{\infty} \beta(v, v') n(v, r, z) n(v', r, z) dv' + RXN \delta(v-v^*) N_{av} \quad (3) \end{aligned}$$

에어로졸 동력학식[식(3)]은 lognormal 분포를 가정하여 q차 모멘트에 대하여 계산할 수 있으며 0차, 1차, 2차 모멘트는 각각 다음과 같이 표현된다 [5,7].

$$u \frac{\partial M_0}{\partial z} = \frac{B_1}{r} \frac{\partial}{\partial r} [r \frac{\partial}{\partial r} (M_{1/3} + B_2 M_{2/3})] \\ + \frac{K\nu}{r} \frac{\partial}{\partial r} (M_0 r \frac{\partial \ln T}{\partial r}) + RXN N_{av} - \xi M_0^2 \quad (4)$$

$$u \frac{\partial M_1}{\partial z} = \frac{B_1}{r} \frac{\partial}{\partial r} [r \frac{\partial}{\partial r} (M_{2/3} + B_2 M_{1/3})] \\ + \frac{K\nu}{r} \frac{\partial}{\partial r} (M_1 r \frac{\partial \ln T}{\partial r}) + RXN N_{av} v^* \quad (5)$$

$$u \frac{\partial M_2}{\partial z} = \frac{B_1}{r} \frac{\partial}{\partial r} [r \frac{\partial}{\partial r} (M_{5/3} + B_2 M_{4/3})] \\ + \frac{K\nu}{r} \frac{\partial}{\partial r} (M_2 r \frac{\partial \ln T}{\partial r}) + RXN N_{av} v^* + \xi M_1^2 \quad (6)$$

식 (4)~(6)의 우변의 첫 번째 항은 확산의 영향을 보이고 있으며, 두 번째, 세 번째 항은 열영동 현상 및  $SiCl_4$  산화 반응에 의한  $SiO_2$  입자의 생성을 각각 나타낸다. 식 (4)와 식 (6)에서 우변의 마지막 항은  $SiO_2$  입자간 충돌의 영향을 나타낸다.

모델식 (1), (2), (4)~(6)에서  $r$ 방향으로는 'finite difference method'를 각각 적용하고  $z$  방향으로의 미분항은 그대로 유지시키는 'method of lines'에 의해  $T$ ,  $C$ ,  $M_0$ ,  $M_1$ ,  $M_2$ 에 대한 편미분 방정식(5개)을 상미분 방정식( $5 \times P$ 개)으로 변환시켰다. 변환된  $5 \times P$ 개의 상미분 방정식은 DGEAR subroutine을 이용하여 풀었다[5,6,7].

본 연구에서는 증착 구간에서의 증착 특성을 고찰하기 위해 증착 구간 내부 벽온도 조절에 의해 열영동 현상에 의한 증착 속도를 조절하여 증착 구간에서의 균일한 증착을 얻도록 하였으며 증착 구간에서의 증착 속도는 다음의 식으로 표시된다.

Deposition flux

$$= 2\pi K\nu (r M_1 \frac{\partial \ln T}{\partial r})|_{r=R} \text{ at } z \\ = (\frac{E_{Dz}}{L_{DZ}})(1000 C_i Q \nu^*) \quad (7)$$

증착 구간 끝의 벽온도를 25°C로 가정하였으며  $E_{Dz}$ 값을 시행착오법으로 조절하여 증착 구간 끝의 튜브벽 온도가 25°C가 되는  $E_{Dz}$ 를 얻었다[8]. 구한  $E_{Dz}$ 를 이용하여 constant deposition flux를 위한 증착 구간의 튜브벽 온도 분포를 계산하였다.

### 3. 실험 방법

본 연구에서 사용된 실험 장치의 개략도는 Fig.1과 같다. 본 실험에서 사용된  $O_2$  기체는 silica-gel을 통과시켜 수분을 충분히 제거한 후 가열로 및  $SiCl_4$  bubbler에 공급하였다.

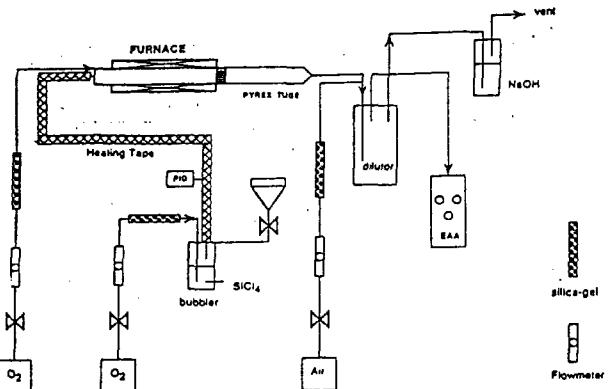


Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus.

$\text{SiCl}_4$ 는 bubbler에서  $\text{O}_2$  기체 내에 증발되어 증기 상태로 정량 공급되었으며  $\text{SiCl}_4$  증기가 공급 line상에서 응축되지 않도록 heating tape을 사용하여 공급 line을 일정한 온도( $30^\circ\text{C}$ )로 유지시켰다. 또 다른 line을 통해 과량의  $\text{O}_2$ 가  $\text{SiCl}_4$ 와 함께 반응 구간인 가열로로 공급되었다. 공급된 반응 기체는 튜브형 가열로에서 열전달에 의해 가열되며 고온 상태에서  $\text{SiCl}_4$ 가 산화되어  $\text{SiO}_2$  입자로 생성되며(반응 구간) 생성된  $\text{SiO}_2$  입자는 증착 구간에서 열영동 현상에 의해 튜브 내벽에 증착 된다(증착 구간).

증착 구간에서는  $\text{SiO}_2$  입자의 증착 특성을 관찰하기 위해 pyrex 튜브를 가열로 뒤쪽에 직렬로 연결하였으며 증착 구간 거리에 따른  $\text{SiO}_2$  입자의 증착량을 측정할 수 있도록 증착 구간 내부에 분리가 가능한 여러 개의 단위판(unit cell)을 제작하여 총 진시켰다.

$\text{SiO}_2$  입자가 충분히 증착된 뒤 각 단위판을 외관과 분리하여 중량을 측정함으로써 반응기 길이에 따른  $\text{SiO}_2$  증착량 및 증착 효율을 계산하였다.

본 실험에서의 표준 조건은 전체 기체 유량=4 l/min,  $\text{SiCl}_4$  농도=0.5 mol%, 반응 온도= $1300^\circ\text{C}$  등으로 설정하여 공정 변수 변화에 따른 영향을 검토하였다[9,10].

#### 4. 결과 및 고찰

반응 구간과 증착 구간 내벽의 온도 구배는  $\text{SiCl}_4$ 의 산화 반응 및 열영동에 의한  $\text{SiO}_2$  입자 증착에 지배적인 영향을 끼치므로 각 구간에서의 튜브 내벽 온도를 공정 조건에 따라 측정한 후 curve fitting에 의해 반응기 거리에 따른 함수로 전화시켜 수치 모사를 위한 경계 조건( $T_w(z)$ )으로 이용하였다.

Fig.2와 Fig.3은 가열로 설정 온도를 변화시켰을 때 반응기 길이에 따른 반응 구간의 벽온도와 증착 구간의 벽온도를 측정

한 결과 및 이를 curve fitting한 결과를 각각 보여주고 있다.

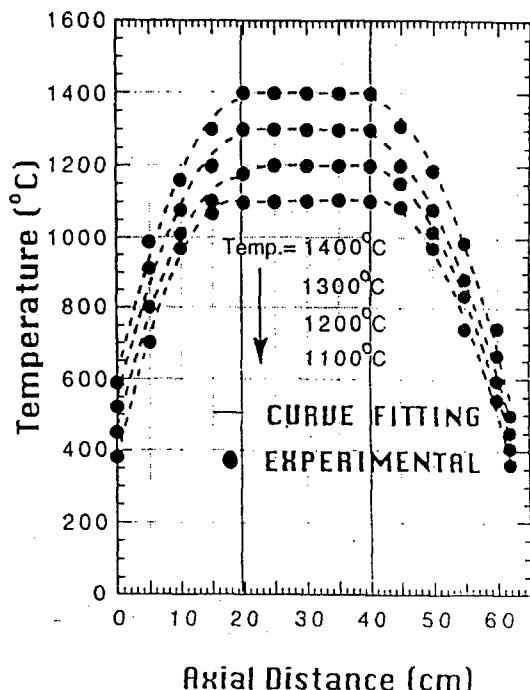


Fig.2 The measured temperature profiles in reaction zone for various furnace setting temperatures.

curve fitting한 결과,  $0 \leq z \leq 20$  일 때 튜브 벽 온도는 반응기 길이( $z$ )에 따라 2차 함수 형태로 증가하였고,  $20 < z \leq 40$  구간의 튜브 벽 온도는 가열로의 설정 온도와 일치하였으며,  $40 < z \leq 62$ ,  $z > 62$ 에서는 2차 함수 형태로 튜브 벽 온도가 각각 감소함을 보이고 있다.

또한 실험에 의해 전체 기체 유량의 변화에 따른 튜브 내벽 온도를 측정하여 가열로 설정 온도를 변화시켰을 때와 같이 반응기 길이에 따른 함수로써 수치 모사에 이용하였다. 반응 구간 초기로부터의 증착 효율( $E_D$ )은 아래와 같이 나타낼 수 있으며 증착 구간에서의 증착 효율에 대한 이론적 예측( $E_{DZ, the}$ ) 및 실험 결과( $E_{DZ, exp}$ )는 식 (8), (9)와 같이 각각 표현할 수 있다.

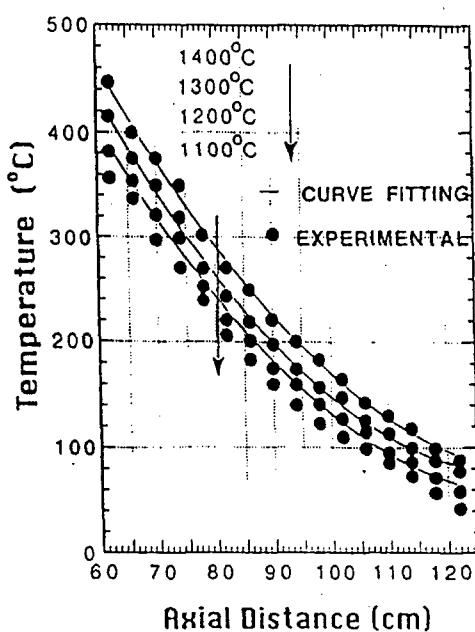


Fig.3 The measured temperature profiles in deposition zone for various furnace setting temperatures.

또한 Fig.3과 Fig.4에서의 벽온도 분포를 경계 조건으로 하여 simulation한 결과를 Fig.4부터 보여 주고 있다.

$$E_{DZ} = \frac{\int_{62}^z (\text{증착된 } SiO_2 \text{ 입자의 양}) dz}{[\text{초기 } SiCl_4 \text{ 농도에 의해}] [\text{전환된 } SiO_2 \text{ 입자의 양}]} \quad (8)$$

$$E_{DZ} = \frac{\sum_i (\text{증착된 } SiO_2 \text{ 입자의 양})}{[\text{초기 } SiCl_4 \text{ 농도에 의해}] [\text{전환된 } SiO_2 \text{ 입자의 양}]} \quad (9)$$

#### 4.1 가열로 설정 온도의 영향

Fig.4는 가열로 설정 온도를 1200°C, 1300°C, 1400°C으로 각각 변화시켰을 때 증착 구간에서의 증착 효율을 수치 모사 결

과( $E_{DZ,\text{the}}$ )와 실험 결과( $E_{DZ,\text{exp}}$ )를 비교하여 나타냈다.

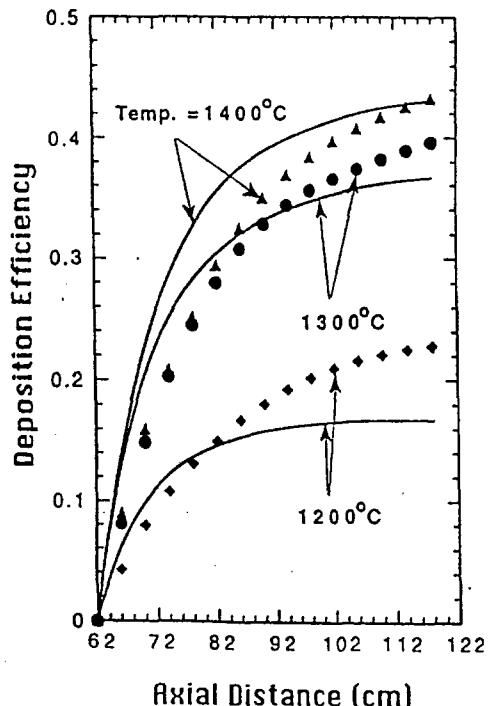


Fig.4 Deposition efficiency in deposition zone along the axial distance for various setting temperature. Experiment results(marks), Simulation results(solid lines).

설정 온도가 1200°C일 경우 온도가 낮아서 전환률이 충분하지 못하므로 증착 구간에서의 최종 증착 효율은 낮게 나타났다. 실험 결과에서 증착 효율은 설정 온도가 1300°C일 경우 약 40%, 1400°C일 때는 43%로 나타나고 있으며 설정 온도 증가에 따라 열영동에 의한 증착 현상이 크게 나타나고 있음을 보이고 있다.

Fig.4에서 가열로 설정 온도 변화에 따른 증착 구간에서의 증착 효율은 수치 모사 결과와 실험 결과가 비교적 잘 부합되고 있으나 증착 구간의 초기 부분에서 실험에 의해 측정한 증착량이 수치 모사 결

과보다 작게 나타난 이유는 실험에서 반응 구간 내의 가열 과정에서 자연 대류 현상에 의해 생성된  $\text{SiO}_2$  입자가 튜브 중앙쪽으로 이동하여 중착 구간 전반부에서는 중착되기 힘들기 때문이다[5,7].

튜브 중앙부에 이동한 입자가 중착 구간 후반부에서 중착하게 되므로 중착 구간 후반부의 중착 실험 결과가 수치 모사 결과보다 높게 나타났다. Fig.5는 중착 구간에서의 벽온도 제어가 없이 Fig.3에서의 벽온도 분포를 가질 때의 결과로서 가열로 설정 온도를 다양하게 변화시켰을 때의 중착 구간 길이에 따른 입자 크기의 결과를 보여주고 있다.

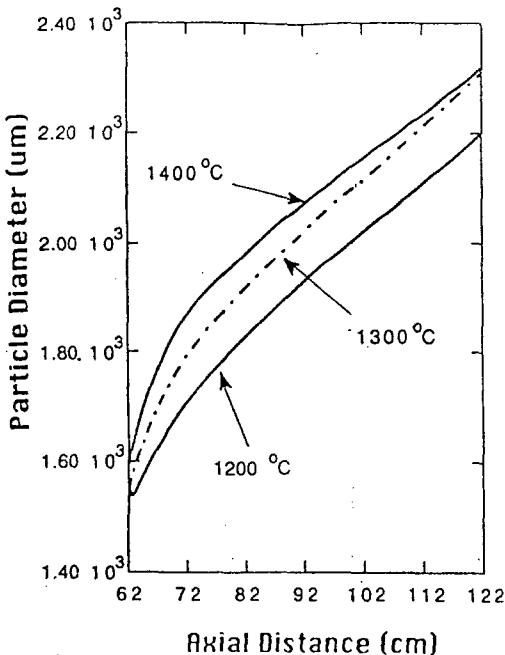


Fig.5 The change of particle diameter deposited in deposition zone for various furnace setting temperatures without temperature control.

설정 온도가 증가함에 따라 산화 반응이 급격히 일어남으로서 입자 생성이 빨리 되어 충돌에 의해 입자가 성장하므로 입자

크기가 크게 나타났다.

가열로 설정 온도가 낮아질수록  $\text{SiCl}_4$ 의 전환률이 낮아 중착 구간의 입자 크기 또한 작게 나타나지만 가열로 설정 온도가  $1300^\circ\text{C}$  이상에서는 중착 구간에서의 열영동 현상이 커지므로  $\text{SiO}_2$  입자의 중착 효율 및 입자 크기는 증가하게 된다. Fig.6은 중착 구간에서 균일한 두께의 중착을 위하여 가열로 설정 온도를 다양하게 변화시켰을 때 중착 구간 길이에 따른 벽온도 분포를 보여주고 있다. 온도가 높을수록 산화 반응에 필요한 충분한 전환률로 튜브 중앙 부근보다 튜브벽 근처에서 더 많은 입자가 생성되므로 균일한 중착을 위해서는 중착 구간 초기에는 튜브벽 온도를 높여서 중착 속도를 낮추어야 하며 중착 구간 후반부에서는 튜브벽 온도를 낮추어서 중착 속도를 증가시켜야 한다.

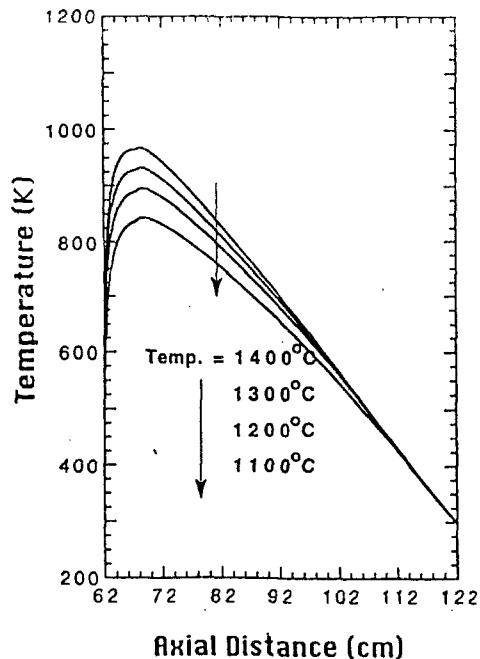


Fig.6 The predicted temperature profiles in deposition zone to deposit  $\text{SiO}_2$  particles with uniform thickness for furnace setting temperatures.

Fig.7은 중착 구간에서의 가열로 설정

온도를 다양하게 변화시켰을 때의 증착 구간 내부 벽온도 조절에 의한 증착 구간 길이에 따른 입자 크기의 결과를 보여주고 있다.

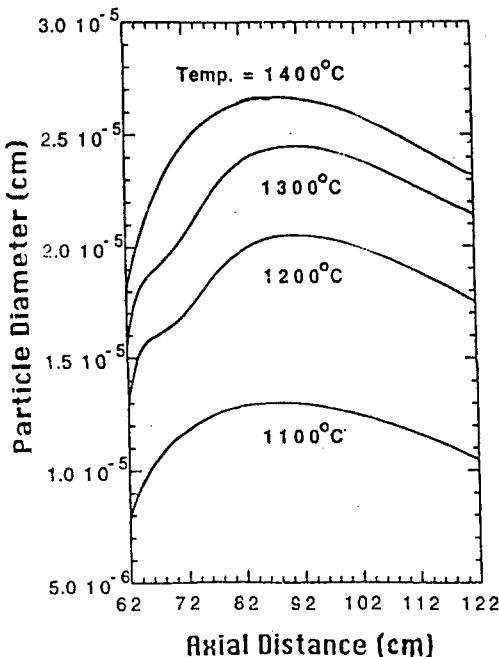


Fig.7 The predicted particle diameter profiles in deposition zone to deposit  $\text{SiO}_2$  particles with uniform thickness for various furnace setting temperatures.

설정 온도가 증가함에 따라 산화 반응이 급격히 일어남으로서 입자 생성이 빨리 되어 충돌에 의해 입자가 성장하므로 입자 크기가 크게 나타났다. 증착 구간 초기에는 반응기 체류 시간이 작아서 입자 크기가 작게 나타났으며 후반부에서는 중앙 부분의 입자 농도가 상대적으로 낮아서 충돌에 의한 성장이 작으므로 입자 크기는 감소하는 경향을 보이고 있다.

#### 4.2 초기 $\text{SiCl}_4$ 농도의 영향

Fig.8은 초기  $\text{SiCl}_4$  농도가 각각 0.1 mol% ~ 5.0 mol% 변화할 때 증착 구간 거리

에 따른 수치 모사 및 실험 결과의 증착 효율( $E_D$ )을 보여주고 있다. 초기 농도가 5 mol%일 경우 화학반응이 활발할 때 ( $25 \leq z \leq 40$ ) 산화 반응에 따른 상당량의 발열량으로 인해 반응 기체가 급격하게 가열되어 기체 온도가 튜브 벽온도보다 높아져서 생성된  $\text{SiO}_2$  입자 증착이 먼저 시작되지만 튜브 중앙 부분의  $\text{SiCl}_4$ 가 튜브벽 쪽으로 확산되지 못하고 튜브 중앙부근에서  $\text{SiO}_2$  입자로 생성되므로 최종 증착 효율은 초기  $\text{SiCl}_4$  농도가 낮을 때 ( $C_i \leq 1.0 \text{ mol\%}$ ) 보다 낮게 나타났다.

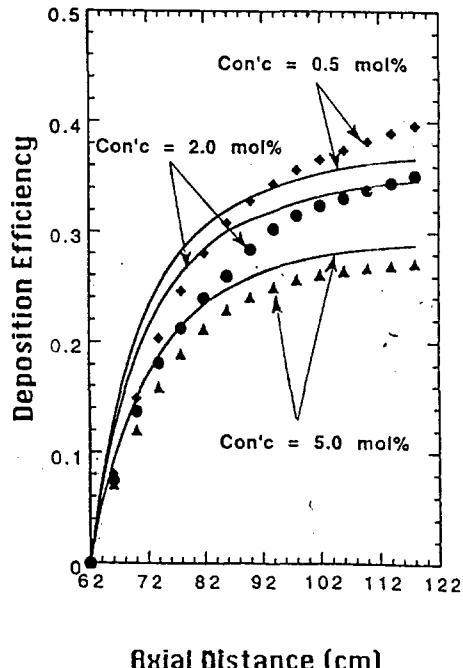


Fig.8 Deposition efficiency in deposition zone along the axial distance for various inlet  $\text{SiCl}_4$  concentrations. Experiment results(marks), Simulation results(solidines)

Fig.9는 증착 구간에서 내부 벽온도 제어가 없이 Fig.3에서의 벽온도 분포를 가질 때의 입자 크기 변화를 보이고 있다.

초기 농도가 낮을 수록  $\text{SiCl}_4$ 의 전환률이 낮아 증착 구간의 입자 크기 또한 작게 나타나지만 초기 농도가 증가할 수록 증착 구

간에서의 충돌 횟수 및 반응열의 증가로  $\text{SiO}_2$  입자 크기는 증가함을 보이고 있다.

Fig.10은 일정한 두께의 중착을 위한 중착 구간 내부 벽온도 제어시의 입자 크기를 보이고 있으며 초기 농도가 증가함에 따라 입자 생성량 및 입자 충돌 횟수도 증가하고 또한 농도 증가에 따른 반응열의 증가로 기체 온도가 빨리 상승되어 초기 입자가 일찍 생성되므로 입자 충돌에 의한 입자 크기가 증가하여 점차적으로 균일한 분포의 입자로 성장함을 나타내고 있다.

중착 구간 초기에는 반응기 체류 시간이 작아서 입자 크기가 작게 나타났으며 후반부에서는 중앙 부분의 입자 농도가 상대적으로 낮아서 충돌에 의한 성장이 작으므로 입자 크기는 감소하는 경향을 보이고 있다.

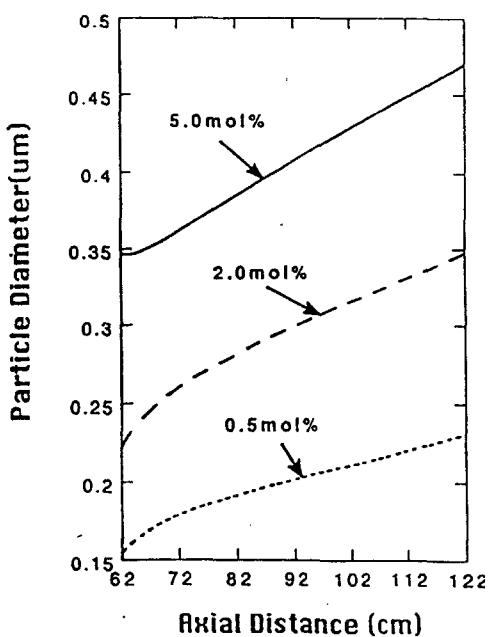


Fig.9 The change of particle diameter deposited in deposition zone for various inlet  $\text{SiCl}_4$  concentrations without temperature control

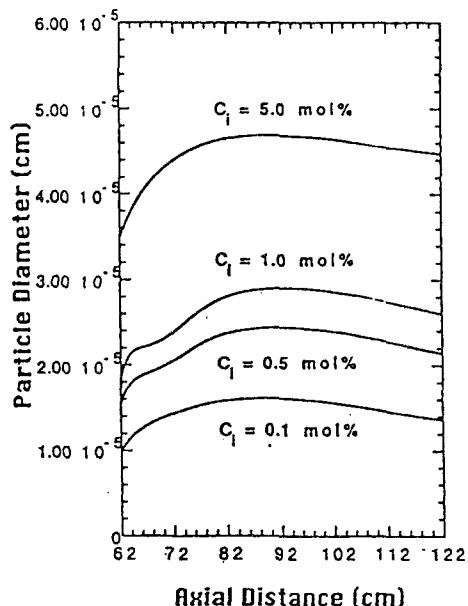


Fig.10 The predicted particle diameter profiles in deposition zone to deposit  $\text{SiO}_2$  particles for various inlet  $\text{SiCl}_4$  concentrations.

#### 4.3 전체 기체 유량의 영향

Fig.11은 전체 기체 유량이 변화할 때 중착 구간에서의 실험 및 수치 모사에 의한 중착 효율을 비교하여 나타냈다.

수치 모사 결과에서  $Q=2 \text{ l/min}$ 일 때 반응 기체가 급격하게 가열되어  $\text{SiCl}_4$  산화 반응은 일찍 종결되나 반응에 의해 생성된 다량의  $\text{SiO}_2$  입자가 반응 구간 후반부( $35 \leq z < 62$ )에서 이미 중착 되었으므로 중착 구간에서의 중착 효율은 표준 조건( $Q=4 \text{ l/min}$ )보다 낮게 나타났다. 반면에  $Q=2 \text{ l/min}$ 의 실험 결과에서는 느린 유체 흐름으로 인해 자연 대류 영향이 커져서[11] 튜브벽 부근에서 생성된 상당량의  $\text{SiO}_2$  입자가 튜브 중앙 쪽으로 이동하며 튜브 중앙 부근에 존재했던 입자가 늦게까지 중착에 관여하여 실험에 의해 측정된  $\text{SiO}_2$  입자의 최종 중착 효율이 이론치보다 높게 나타났다.

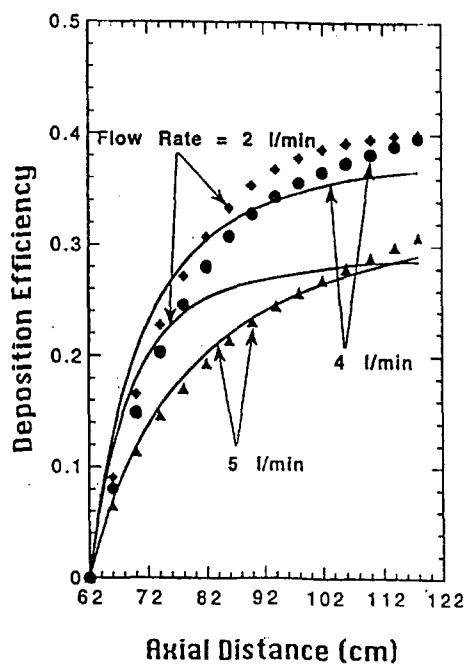


Fig.11 Deposition efficiency in deposition zone along the axial distance for various gas flow rates.

Experiment results(marks),  
Simulation results(solidines)

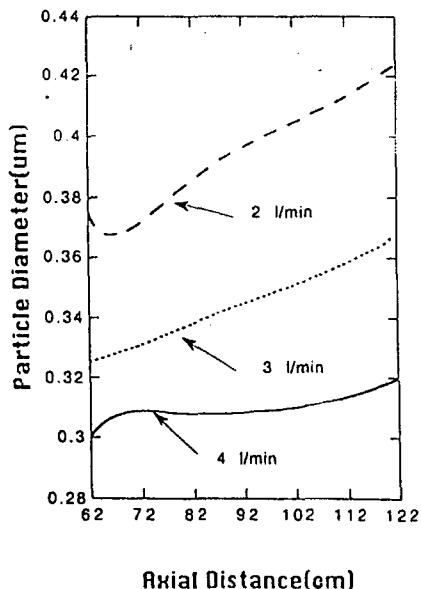


Fig.12 The change of particle diameter deposited in deposition zone for inlet total various gas flow rates without temperature control.

Fig.12는 중착 구간에서의 벽온도 제어가 없이 Fig.3에서의 벽온도 분포를 가질 때의 입자 크기 변화로서 전체 기체 유량을 다양하게 변화시켰을 때의 중착 구간 길이에 따른 입자의 변화를 보여주고 있다. 전체 기체 유량이 작아짐에 따라 느린 유체 흐름으로 자연 대류의 영향이 커져서튜브 중앙에 존재했던 입자가 늦게까지 중착에 관여하므로 입자 크기가 증가하는 경향을 보이고 있다

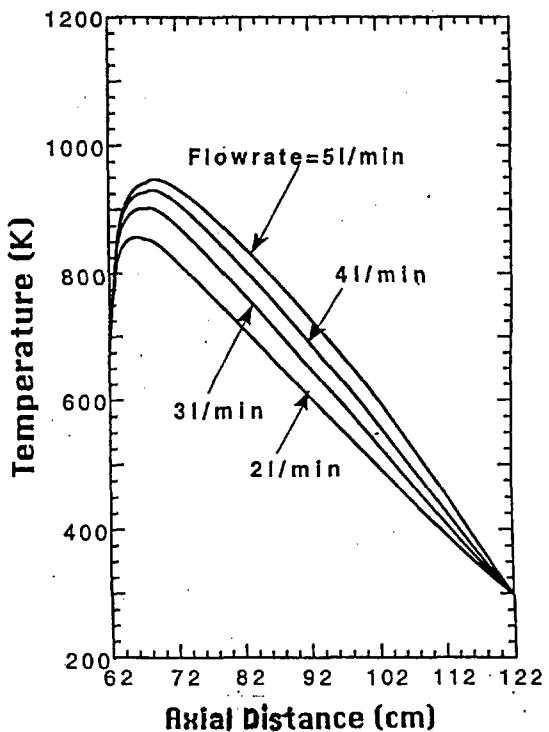


Fig.13 The predicted temperature profiles in deposition zone to deposit  $\text{SiO}_2$  particles with uniform thickness for various total gas flow rates.

Fig.13은 전체 기체 유량을 변화시켰을 때의 중착 구간에서 균일한 중착을 얻기 위한 중착 구간 내부 벽온도 분포를 보여

주고 있다. 기체 흐름이 빠를수록 중앙 부근보다 튜브벽 근처에서 더 많은 입자가 생성되므로 균일한 증착을 위해서는 유량이 높아질수록 벽온도를 높게 유지함으로서 증착 속도를 늦추어야 한다. 증착 구간 초기에는 튜브벽 근처에서 중앙보다 더 많은 입자가 존재하므로 균일한 증착을 위하여 튜브벽 온도를 높여서 증착 속도를 낮추어야 하며 증착 구간 후기에는 온도를 낮추어서 증착 속도를 높이어야 한다.

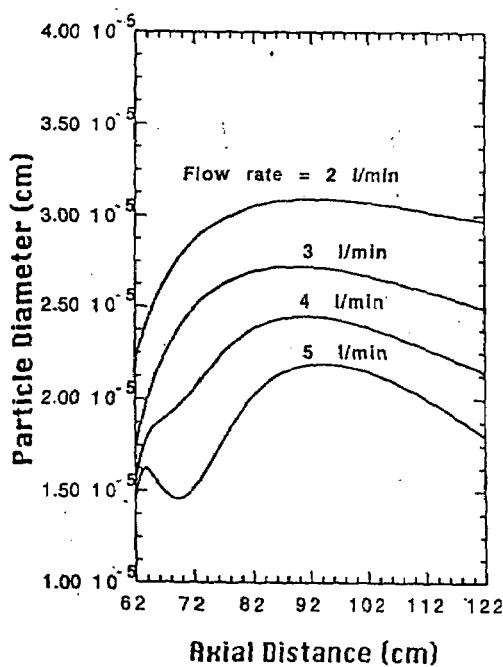


Fig.14 The predicted particle diameter profiles in deposition zone to deposit  $\text{SiO}_2$  particles for uniform thickness for various total gas flow rates.

Fig.14는 증착 구간에서의 전체 기체 유량을 다양하게 변화시켰을 때의 증착 구간 길이에 따른 입자 크기의 변화를 보여주고 있다. 초기에는 반응기 체류 시간이 작아서 입자 크기가 작게 나타났으며 후반부에서는 튜브 중앙에 존재했던 입자가 늦게까지 증착에 관여하므로 입자 크기는 증가하

는 경향을 보이며 차츰 균일한 크기의 입자로 성장함을 보이고 있다.

## 5. 결 론

본 연구에서는 균일한 두께의 증착을 연구하기 위해 튜브형 가열로 실험 장치를 이용하여  $\text{SiO}_2$  입자의 증착 현상을 이론적/실험적으로 고찰하였다.

특히 증착 구간에서 균일한 증착을 위해 증착 구간 내부 벽온도를 조절하여 균일한 두께의 코팅을 이루는 방법을 제시하였다. 공정 변수로써 가열로 설정 온도,  $\text{SiCl}_4$  초기 농도, 전체 기체 유량 등을 변화시키며  $\text{SiCl}_4$  전환률과 생성되는  $\text{SiO}_2$  입자의 증착 특성에 대한 수치 모사 결과와 실험 결과를 비교하였으며 본 연구의 주요 결론은 다음과 같다.

(1) 가열로 설정 온도가 낮을수록( $1300^{\circ}\text{C}$  이하)  $\text{SiCl}_4$ 의 전환률이 낮아 증착 구간의 증착 효율 또한 낮게 나타나지만 가열로 설정 온도가  $1300^{\circ}\text{C}$  이상에서는 증착 구간에서의 열영동 현상이 커지므로  $\text{SiO}_2$  입자의 증착 효율 및 입자 크기는 증가하게 된다.

(2)  $\text{SiCl}_4$  초기 농도가 커질수록  $\text{SiCl}_4$  산화에 따른 다량의 발열량으로 인해 반응 기체가 급격하게 가열되어 반응기 중앙 부분의  $\text{SiCl}_4$ 가 튜브벽 쪽으로 확산되기 힘들기 때문에 증착 효율 및 입자 크기는 감소하게 된다.

(3) 기체 유량이 4 l/min 이상일 때  $\text{SiCl}_4$  전환률이 낮아서 증착 효율 및 입자 크기도 낮게 나타났다. 실험 결과 전체 기체 유량이 2 l/min일 때는 자연 대류의 영향이 커져서 증착 구간에서의 증착 효율이 수치 모사 결과에 비하여 높게 나타났다.

(4) 중착 구간에서 온도 제어가 없을 때는 중착 구간 길이에 따라 입자 크기는 점차적으로 증가하였으나 온도 제어를 한 경우의 수치 모사 결과는 차츰 일정 분포의 크기를 보이고 있다.

(5) 기체 흐름이 빠를수록 튜브벽 부근이 중앙보다 더많은 입자가 생성되므로 균일한 중착을 위해서는 유량이 높아질수록 벽온도를 높게 유지함으로서 중착 속도를 늦추어야 한다.

### 사용 기호

$\alpha$  : thermal diffusivity, [cm<sup>3</sup>/sec]

$B_1$  : particle diffusivity constant,  
 $k_B T (162 \pi^2)^{-1/3} \mu^{-1}$

$B_2$  : slip correction constant for diffusion,  $3.314\lambda(\pi/6)^{1/3}$

$C$  : concentration of SiCl<sub>4</sub> [mol/cm<sup>3</sup>]

$C_i$  : inlet concentration of SiCl<sub>4</sub> [mol/cm<sup>3</sup>]

$C_p$  : heat capacity of O<sub>2</sub> [J/g K]

$\rho$  : density of SiCl<sub>4</sub> [g/cm<sup>3</sup>]

$D$  : diffusivity of SiCl<sub>4</sub> [cm<sup>2</sup>/sec]

$D_p$  : diffusivity of SiO<sub>2</sub> [cm<sup>2</sup>/sec]

$d_p$  : particle diameter [cm]

$\Delta H$  : heat of reaction for SiCl<sub>4</sub> oxidation [cal/mol], 251 kJ/mol

K : thermophoretic coefficient  
 $k_B$  : Boltzmann's constant  
 $n$  : particle size distribution function

$N_{av}$  : Avogadro's number

r : radial distance of reactor [cm]

RXN : oxidation rate of SiCl<sub>4</sub> [mol/cm<sup>3</sup>],  $k_o \exp(-E/RT) C$

T : gas temperature in reaction zone and deposition zone [K]

$T_w$  : tube wall temperature [K]

u : axial velocities of gas stream [cm/sec]

v, v' : particle volume [cm<sup>3</sup>]

v' : volume of SiO<sub>2</sub> monomer [cm<sup>3</sup>]

z : axial distance of reactor [cm]

$\xi$  : collision coefficient for zeroth moment

$\nu$  : kinematic viscosity [cm<sup>2</sup>/sec]

$\zeta$  : collision coefficient for second moment

### 참 고 문 헌

- [1]. Kim, K. S. : *the proceeding of 2nd SIChem, Sympo*, 229, Seoul, Korea, Apr. 25-28 (1990)

- [2]. Friendlander, S. K : "Smoke, Dust and Haze", Wiley, New York (1986)
- [3]. Walker, K. L., Geyling, F. T. and Nagel, S. R. : *J. Amer. Ceram. Soc.*, 63, 552 (1980).
- [4]. Nagel, S. R., MacChesney, J. B. and Walker, K. R. : *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-18, 459 (1982).
- [5]. Kim, K. S. and Pratsinis, S. E. : *AICHE J.*, 34, 912 (1988).
- [6]. Pratsinis, S. E. and Kim, K. S. : *J. Aerosol Sci.*, 20, 101 (1988).
- [7]. Hyun, B. S. and Kim, K. S. : *Hwahak Konghak*, 33(2), 183 (1995).
- [8]. Kim, K. S : *the Proceeding of 5th World Congress of Chem. Eng.*, Vol. VI, p46 San Diego, CA, July 14-18 (1996)
- [9]. Powers, D. R. : *J. Am. Ceram. Soc.*, 61, 295 (1978).
- [10]. French, W. G, Pace, L. J. and Foertmeyer , V. A : *J. Phys. Chem.*, 82, 2191, (1978)
- [11]. Kays, W. M. and Perkins, H. C. : "Handbook of Heat Transfer(edited by Rohsenow, W. M., Hartnett, J. P. and Ganic, E. N.)", 2nd ed., MacGraw-Hill, New York, Ch.7 (1985).[1].  
Kim, K. S.: *Chem. Ind. & Tech.*, 11(5), 357(1993)