

## 정전분무에 의한 고점성 액체의 액적 생성 특성에 관한 실험적 연구

구본기<sup>\*</sup>·김상수<sup>†</sup>

(2001년 10월 15일 접수, 2002년 2월 8일 심사완료)

### An Experimental Study on Characteristics of Droplet Generation by Electrospraying for Highly Viscous Liquids

Bon Ki Ku and Sang Soo Kim

**Key Words :** Electrospraying(정전분무), Highly Viscous Liquid(고점성 액체), Jet Breakup(제트분열), Lateral Instability(측면방향 불안정성), Scaling Law(크기식), Glycerol(글리세롤)

#### Abstract

Generation characteristics of electrospray droplets for highly viscous liquid have been investigated by measuring size distributions of droplets emitted from the Taylor cone using glycerol solutions with various conductivities. Because of very small volatility of glycerol, droplet sizes can be measured by an aerodynamic size spectrometer (TSI Aerosizer DSP) with negligible evaporation of droplets. For highly conducting and viscous liquid, the sizes of the droplets electrosprayed from the Taylor cone are found to be relatively insensitive to applied voltages and the electrosprays assisted by the corona discharge can produce monodisperse droplets as long as the corona intensity is not too high. Near the minimum flow rate where a liquid cone is stable, the spray tends to consist of a one-peak monodisperse distribution of droplets. However, at high flow rates, the spray bifurcates into bimodal distributions, which are consistent with the result of the previous study for less viscous liquids than our liquids. For liquid flow rates ( $Q$ ) below 1 nl/s, the measured droplet diameters by the aerosizer are in the range of 0.30 to 1.2  $\mu\text{m}$  for the glycerol solutions. The diameters of monodisperse droplets scale approximately with  $r^* = (Q\tau)^{1/3}$  where  $r^*$  is a characteristic length and  $\tau$  is the electrical relaxation time of the fluid. However, when compared with several representative scaling laws, the droplet diameters are two to six factors greater than those predicted by the scaling laws. This may be closely related to the combined effect of the much higher viscosity and the electrical charge on the jet breakup of glycerol solution.

#### 기호설명

$G(\epsilon)$	: 크기식의 비례상수
$Q$	: 정전분무 액체의 유량 ( $\text{m}^3/\text{s}$ )
$K$	: 정전분무 액체의 전기 전도계수 ( $\text{S}/\text{m}$ )
$\Pi_\mu$	: 점성의 무차원수
$\gamma$	: 액체의 표면장력 계수 ( $\text{N}/\text{m}$ )

$\eta$	: 액체유량의 무차원수
$\epsilon$	: 정전분무 액체의 유전상수
$\epsilon_0$	: 진공에서의 유전율 ( $\text{C}^2/\text{Nm}^2$ )
$\mu$	: 액체의 점성계수 ( $\text{mPa s}$ )
$\rho$	: 액체의 밀도 ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )
$\tau$	: 액체의 전기적 이완시간 (s)
$r^*$	: 전기적 특성길이 (m)

<sup>†</sup> 책임저자, 회원, 한국과학기술원, 기계공학과  
Email: sskim@kaist.ac.kr

TEL: (042)869-3021 FAX: (042)869-3210

<sup>\*</sup> 회원, 한국과학기술원 기계공학과 기계기술연구소

#### 1. 서 론

정전분무 특성에 관한 실험적 연구들이 물질체

조와 박막코팅, 단백질을 포함한 생화학적으로 중요한 물질의 질량분석 등에 응용되기 위하여 다양한 물성치를 갖는 액체를 사용하여 수행되고 있다.<sup>(1-4)</sup> 정전분무에 의해 발생된 액적의 크기는 액체의 유량과 액체의 물성치, 즉, 전기 전도계수, 유전상수, 표면장력 계수, 점성계수 등에 따라 달라진다는 사실은 잘 알려져 있다.<sup>(5, 6)</sup> 특히, 정전분무에서 발생되는 액적의 크기는 액체의 유량과 전기 전도계수에 지배적으로 영향을 받는다는 사실이 많은 연구자들에 의해 확인되었다.<sup>(5-8)</sup> Fernandez de la Mora 와 Loscertales<sup>(7)</sup>는 처음으로 기존의 실험데이터와 자신들의 실험결과를 토대로 콘제트모드(cone-jet mode)에서 높은 전도성 ( $K > 1E-5 \text{ S/m}$ )을 지닌 액체에 관한 크기식(scaling law)을 제안하였으며 이후의 많은 연구들에 의해 그식의 타당성이 입증되었다.<sup>(8-11)</sup> 한편, Ganan-Calvo<sup>(12)</sup>와 Hartman<sup>(13)</sup> 등은 각각 독립적으로 또 다른 액적의 크기식을 제시하였는데, 이 크기식들은 높은 전도성을 띠는 액체뿐만 아니라 낮은 전도성을 지닌 액체에 대해서도 적용할 수 있는 좀 더 포괄적인 크기식이라 할 수 있다. 지금까지 정전분무와 관련된 대부분의 연구들은 비점성(inviscid) 또는 적당한 점성을 지닌 액체에 주로 집중되어 있는데, 그 이유로는 높은 점성을 지닌 액체를 가지고는 안정된 콘제트 모드를 형성하기가 어렵고 따라서 균일하고 미세한 액적을 생성시키기가 수월하지 않기 때문이다. 최근에 높은 점성을 지닌 글리세롤(glycerol)을 이용한 전기적 콜로이드 추진기가 미소 인공위성 추진 분야에서 상당한 관심을 끌고 있다.<sup>(14, 15)</sup> 전기적 추진(electrical propulsion) 방법은 결코 새로운 차원의 추진을 의미하는 것이 아니고 이미 1960년대에 처음 인공위성에 시험된 방법이다. 글리세롤 액체는 낮은 증기압과 용질의 용해 능력이 뛰어나기 때문에 이러한 잇점들이 콜로이드 추진기에 널리 사용되어져 왔다.<sup>(16-18)</sup> 이러한 맥락에서 앞으로 전기적 추진기에 효과적인 적용과 높은 점성에 의한 액적의 분열 기구에 대한 깊은 이해를 얻기 위해 글리세롤의 정전분무 특성을 구체적으로 조사할 필요가 있다.

글리세롤을 이용한 정전분무 실험은 최초로 Zeleny<sup>(19)</sup>에 의해서 수행되었지만 액적의 크기를 측정하지 못했다. 글리세롤 액적크기의 측정은 Fernandez de la Mora 등<sup>(20)</sup>에 의해 처음으로 시도되었지만, 그들도 주목했듯이, 측정의 정확도가 20% 까지의 오차가 발생되었다. Rosell-Llompart 와 Fernandez de la Mora<sup>(21)</sup>는 글리세롤 보다는 점성이 작은 에칠렌 글리콜(ethylene glycol) 용액을 가지고 에어로사이저를 사용하여 여러 유량에 대해 액적

의 크기를 측정하였다. 그들의 실험결과에 의하면, 발생된 액적분포는 액체의 유량이 큰 경우, 이중모드(bimodal)나 다중모드(multi-modal) 분포를 나타내고 액적의 크기와 액체제트의 분열이 액체의 점성계수에 지배적으로 영향을 받는다고 알려져 있다. 그들의 연구결과는 점성이 높은 액체에 관한 정전분무 특성을 정량적으로 조사했다는 점에서 높이 평가할 만하다. 기존의 비점성 액체를 사용한 결과와 비교하면, 이중모드나 다중모드의 액적 분포가 나타나는 현상은 특이하다. 뿐만 아니라 전기적으로 대전된 액체 제트의 분열에 의해 생성되는 액적의 크기는 대전되지 않은 비점성 액체제트의 분열이론으로 예측하기에는 상당한 오차를 유발시키는데, 이것은 액체제트 상에 존재하는 표면전하가 점성이 매우 높은 액체에 대해서는 액체제트 안정성에 상당한 영향을 미친다는 것을 의미한다. 이런 이유로, 액체의 점성이 커질수록 표면전하가 액체제트 분열에 미치는 영향은 커질 것으로 예상되며 이것은 실험적으로 확인되어져야 한다.

따라서 본 연구에서는 글리세롤 용액에 대해서 공기역학적 입경 측정기를 사용하여 액적의 크기 분포를 측정함으로써 정전분무에 의한 고점성 액체의 액적 생성 특성을 정량적으로 조사하며 기존의 데이와의 비교를 통한 고점성 액체의 분무특성을 해석하고자 한다.

## 2. 실험 장치 및 방법

### 2.1 실험장치 구성

본 연구에서 사용된 실험장치의 구성은 Fig. 1에 나타나 있으며 최근 Ku 와 Kim,<sup>(10)</sup> 구 등<sup>(11)</sup>에 의해 사용된 실험장치와 거의 유사하다. 장치는 크게 정전분무 체임버, 액체 공급 장치, CCD 카메라를 포함한 가시화 장치, 분무 전류 측정 장치로 구성된다. 스테인리스 스틸로 제작된 십자형 정전분무 체임버내에서 분무가 일어나도록 하였고 분무과정을 CCD 카메라로 모니터링하기 위해 십자형 체임버 앞뒤로 창을 내었다. 분무될 액체는 용융 석영관(fused silica line)(100  $\mu\text{m}$  ID, Polymicro Technologies Inc., Phoenix, Arizona)과 스테인리스 스틸관(127  $\mu\text{m}$  ID)을 통하여 정전분무 체임버로 공급되고 관 끝은 액체에 의해 젖지 않도록 콘 모양으로 가공하였다. 또한 관 끝에 전기장을 가할 수 있도록 하기 위해 석영관을 금으로 코팅하였다. 분무액체는 액체가 담긴 유리체임버에 가압을 하

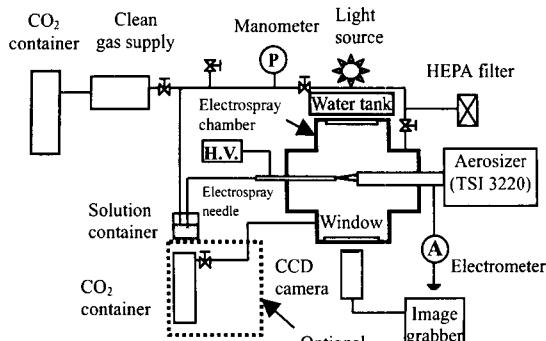


Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup

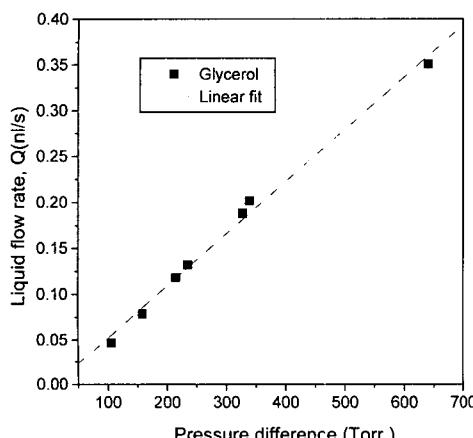


Fig. 2 Typical calibration curve of liquid flow rate vs. pressure difference through the liquid line

여 압력차에 의해 공급되도록 하였으며 공급유량은 석영관에 기포를 넣어 기포가 일정거리를 움직이는 데 걸리는 시간을 측정하여 보정하였다. 액체의 유량은 석영관 양단의 압력차에 선형적으로 비례하여 증가하며 유량과 압력차의 전형적인 보정그래프가 Fig. 2에 나타나 있다.

정전분무에 의해 발생된 액적들은 구리관을 통해 공기역학적 입경 측정기(TSI 3220 Aerosizer DSP)로 샘플링함으로써 실시간으로 크기를 측정하였다. 공기역학적 입경 측정기는 각각의 액적들에 대해 샘플링 기체가 노즐을 통해 초음속으로 방출될 때 측정된 액적의 속도와 입자의 밀도정보로부터 액적의 크기를 산출해 낸다. 액적의 속도는 일정거리를 지나는 액적의 시간을 측정하여 에어로사이저 내부에서 측정되어 진다. 정전분무에 의해 발생된 액적들이 띠는 전하량은 에어로사이저로 액적의 크기를 결정하는데 거의 영향을 주지

Table 1 Physical and electrical properties of some solutions used in this study

Name	Density (g/cm <sup>3</sup> )	Viscosity (mPa s)	Electrical conductivity (S/m)	Vapor pressure (Torr)
GLY	1.262(21)	564 <sup>a</sup> 915(25)	1.57E-6 (20.4)	9.60E-5 <sup>b</sup> (20)
GLY1	1.270(20)	~1400 (20)	5.44E-3 (20.2)	Dielectric constant
GLY2	1.292(21)		1.20E-2 (20.2)	
GLY3	1.342(21)	675 <sup>a</sup> (23.2)	1.44E-2 (23.2)	42.5 <sup>b</sup>
GLY4	1.390(21)	690 <sup>a</sup> (23.2)	1.68E-2 (23.2)	Surface tension (N/m) 63.3E-3 <sup>t</sup>

Solution name is the abbreviated name of the solvent.

<sup>a</sup> From measurement at 30°C.

<sup>b</sup> From Riddick and Bunger (1970).

The value in parenthesis is the surrounding temperature (°C) in measuring the property.

않는다고 알려져 있다.<sup>(21)</sup>

본 연구에서는 정전분무의 다양한 분무모드 중 콘제트 모드에서 실험을 수행하기 위하여, 발생된 액적들을 에어로사이저로 샘플링하기 전에 액적들로 구성된 스프레이의 총전류량을 전류계(HP 3458A Multimeter)를 사용하여 분무모드가 콘제트 모드인가 아닌지를 점검하였다. 콘제트 모드에서는 발생되는 스프레이의 전류가 안정적이어서 시간에 따른 전류의 변화가 일정하게 유지되기 때문에 스프레이 전류를 실시간으로 측정함으로써 콘제트 모드의 형성여부를 확인할 수 있었다. 일단 콘제트 모드가 확인되면 액적들은 바로 에어로사이저로 샘플링하여 그 크기를 측정하였다.

## 2.2 실험변수 및 물성치 측정

본 연구에서는 고점성 액체의 분무특성을 체계적으로 조사하기 위하여 액적의 크기에 주로 영향을 미치는 두 변수인 액체의 유량과 전기 전도계수를 변화시켜 가면서 정전분무에 의해 발생되는 액적들의 크기를 측정하였다. 유량의 조절은 정전분무 채임버와 액체공급 용기 사이의 압력차를 이용하였고 전기 전도계수는 순수액체에 요오드화나트륨(NaI)을 첨가하여 조절하였다. 실험에서 사용된 용액의 물성치들은 Table 1에 나타나 있고 이들은 다양한 측정장치를 이용하여 측정하였다. 전

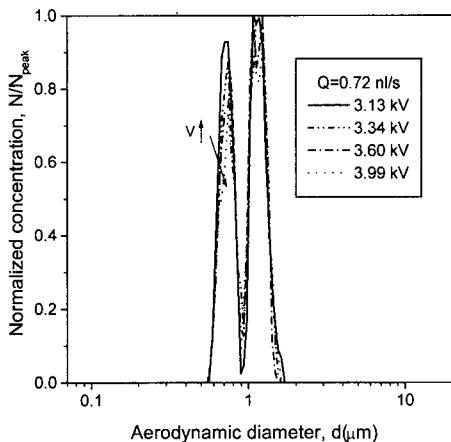


Fig. 3 Size distributions measured by the aerosizer for various applied voltages at high flow rate of GLY1 solution.

기 전도계수는 Prof. Fenn 에 의해 제시된 방법<sup>(22)</sup>을 사용하여 실험실에서 제작한 전도계수 측정기로 측정하였고 점성계수는 점성계수 측정기 (Brookfield Digital Viscometer Model DV-I+ ver. 3.2)로 측정하였으며, 용액의 밀도는 일정량의 질량과 부피를 측정하여 계산하였다. 나머지 물성치들은 참고문헌<sup>(23)</sup>에 나와 있는 값들을 사용하였다.

### 3. 실험결과 및 해석

#### 3.1 고점성 액체의 정전분무 특성

Figs. 3-4 는 본 실험에서 사용한 용액 중 전기 전도계수가 가장 낮은 GLY1 용액을 가지고 에어로사이저로 측정한 수농도를 나타낸다. 수농도는 피크값으로 표준화되어 있다. 콘제트 모드가 유지되는 유량범위 내에서 유량이 매우 클 때는 Fig. 3 에서 보듯이 액적의 분포가 이중모드(bimodal) 형태로 나타나 있다. 두개의 피크는 정전분무에 의해 생성되는 주된 액적들로 구성된 것으로써 평균 크기가 각각 약 0.7μm 과 1.2μm 에 해당된다. 이 두개의 피크는 1 차액적의 분열에 의해 일어난 것이 아니라 1 차액적이 2 종류로 생성된 것이다. 정전분무에서 1 차액적의 분열을 일으키는 원인으로는 액적의 증발에 의한 액적 분열 기구를 들 수 있지만, 본 실험에서 사용한 글리세롤은 증발이 거의 일어나지 않는 액체로서 액적의 초기 대전량과 크기가 그대로 유지될 수 있다. 이런 이유로 본 연구에서는 1 차액적의 분열을 일으키는 액적의 증발은 일어나지 않는다고 판단된다. 실제로

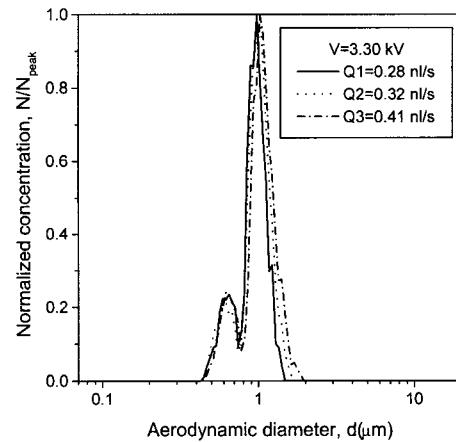


Fig. 4 Size distributions measured by the aerosizer for various liquid flow rates of GLY1 solution.

글리세롤 액적의 증발시간 계산 결과, 0.3μm 크기의 액적이 0.29μm 로 증발하는 데 걸리는 시간은 약 0.19 초이며 이는 액적이 발생되고 공기역학적 임경 측정기까지 도달하는데 걸리는 시간보다 (약 50ms) 상당히 커서 증발에 의한 액적의 분열은 무시할 수 있다. 한편, 인가전압이 증가함에 따라 작은 크기의 액적들로 구성된 피크값은 작아지고 큰 액적들로 구성된 피크값은 상대적으로 변화가 거의 없음을 볼 수 있다. 이러한 사실은 두개의 피크값 중 전압에 의해 영향을 받는 것은 액적의 크기가 작은 쪽의 피크값임을 보여 주며 오른쪽 피크값은 전압의 변화와는 거의 무관하게 생겨나는 액적들임을 알 수 있다. 즉 전도성이 높은 액체의 경우, 전압이 증가해도 스프레이 전류는 거의 변화가 없다는 사실로부터 오른쪽 피크값이 정전스프레이에 의한 주 액 적들로 구성된 것이고 왼쪽의 것들은 전압이 액체겠 분열에 미치는 영향으로 인한 2 차 액적들로 구성된 것으로 생각된다. 그리고 Fig. 3 에서 또 하나 주목할 사항은 인가전압이 증가해도 피크가 발생하는 액적크기는 변하지 않는다는 사실이다. 이것은 전도성이 높은 본 액체의 경우, 정전스프레이에 의해 발생되는 액적의 크기는 인가전압에 거의 영향을 받지 않는다는 사실을 의미한다.<sup>(6,21)</sup> Fig. 4 는 이 용액으로 유량이 적은 안정된 콘제트 모드 범위에서 유량을 변화시켜 가면서 얻은 액적크기 분포를 나타낸다. 유량이 적은 콘제트 모드에서는 Fig. 3 에 나타났던 두개의 피크값 중 액적 크기가 작은 쪽의 피크가 상당히 줄어들어 있음을 볼 수 있고 유량이 증가함

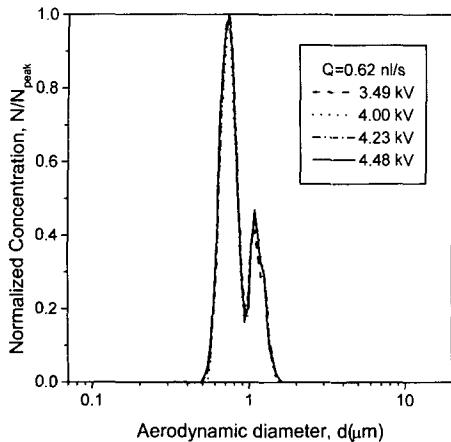


Fig. 5 Size distributions measured by the aerosizer for various applied voltages of GLY2 solution

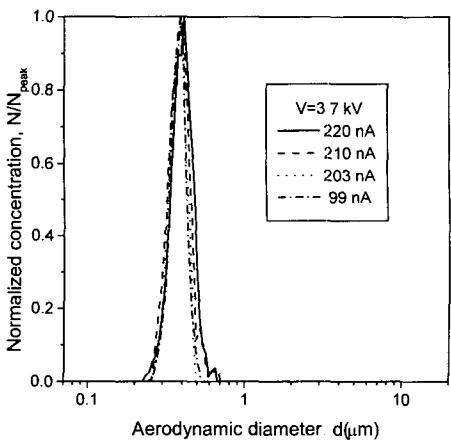


Fig. 6 Size distributions measured by the aerosizer for various spray currents of GLY3 solution

에 따라 오른쪽 피크가 생기는 액적의 크기가 조금씩 증가함을 알 수 있다. Fig. 4에서 주 피크값이 생기는 액적의 크기는 0.97~1.0  $\mu\text{m}$ 이고 Fig. 3에서는 오른쪽의 피크값이 약 1.2  $\mu\text{m}$  부근에서 나타난다.

GLY1 용액을 가지고 확인한 바와 같이 점성이 높은 액체에 있어서 정전분무 액적의 분포가 유량이 클 때 이중모드를 나타내는 이유는 다음과 같이 설명될 수 있다. 유량이 증가함에 따라 액체제트 표면에 존재하는 전하량은 증가하게 되고 이로 인해 제트 표면에서 과다한 전하들간의 반발력이

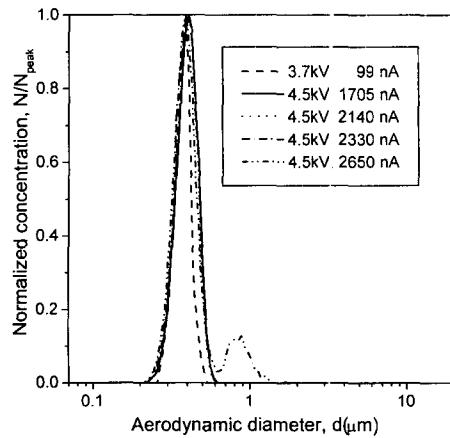


Fig. 7 Size distributions measured by the aerosizer for various applied voltages of GLY3 solution when mild corona discharge occurs

커져 액체제트의 분열모드를 제트축방향 분열모드 (axisymmetric breakup mode)에서 측면방향 분열모드 (lateral breakup mode)로 천이시하게 된다. 이 과정에서 다양한 크기의 액적들이 생겨나게 되며 단일 피크가 아닌 두개의 피크를 갖는 액적분포를 갖게 된다. 이러한 사실은 점성이 물보다 40~50 배 큰 액체에 대해 실험적으로 확인되었고<sup>(21)</sup> 이론적으로도 점성이 높은 대전된 액체제트의 안정성에 관한 해석이 본 실험결과를 뒷바침해 준다.<sup>(24, 25)</sup>

### 3.2 인가전압과 코로나 방전이 액적분포에 미치는 영향

Fig. 5은 인가전압의 변화에 따른 GLY2 용액의 액적분포를 나타낸다. 인가전압을 3.49kV에서 4.48 kV로 증가함에도 불구하고 콘제트 모드에서 발생되는 액적의 크기분포는 거의 일정하게 유지됨을 볼 수 있다. 이것은 전기 전도성이 매우 높은 액체의 경우, 액체콘 및 제트의 표면은 거의 등전위를 띠게 되어 제트의 분열을 유도할 제트표면에 평행한 전기력이 증가되지 않기 때문으로 생각된다. 한편, Fig. 4와는 달리, Fig. 5에서 1차피크가 액적 크기가 작은 곳에서 생기고 2차피크가 1차피크보다 큰 크기에서 생기는 것은 사용된 용액의 전기 전도계수의 영향으로 판단된다. 즉, Fig. 4와 Fig. 5에서 1차피크의 위치가 바뀔 수 있는 이유는 사용된 액체의 전기 전도계수가 증가함에 따라 액체제트 표면의 전하 분포량이 달라지고 이로

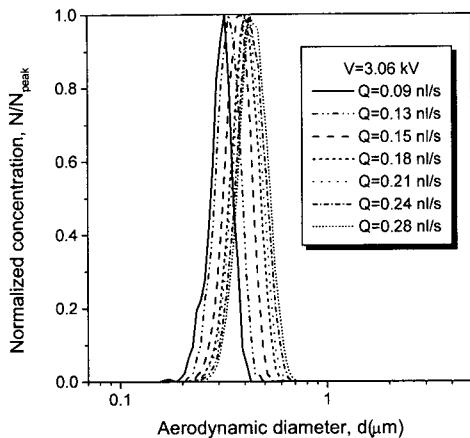


Fig. 8 Size distributions measured by the aerosizer for various flow rates of GLY4 solution

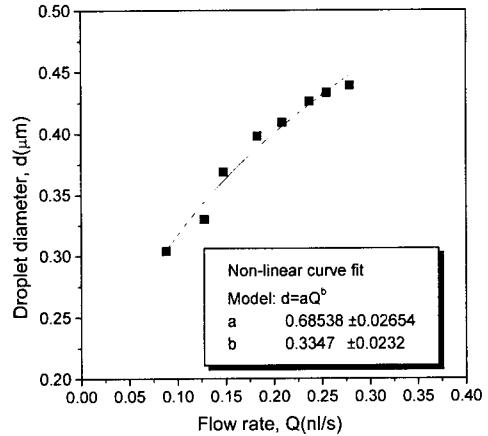


Fig. 9 Mean droplet diameter measured by the aerosizer for various flow rates of GLY4 solution

인해 액체제트의 분열모드에 영향을 주어 생성되는 액적들의 크기 분포가 달라질 수 있기 때문에 추측된다. 이러한 현상은 아직까지 구체적으로 이해되지 않지만 이미 기존의 결과에서도 1 차피크와 2 차피크의 위치가 바뀐다는 사실을 확인할 수 있다<sup>(21)</sup>.

Figs. 6-7 은 GLY3 용액을 사용하였을 경우의 액적분포를 나타낸다. Fig. 6에서 보듯이 일정한 인가전압하에서, 생성되는 스프레이의 전류가 작을수록 즉, 액체의 유량이 적을수록, 더 단분산성이 높은 액적들이 나타나며, 스프레이 전류가 클수록 액적분포의 폭이 넓어지고 제 2의 피크가 나타나기 시작한다. 앞에서 보여진 용액들보다는 상당히 균일한 액적분포를 나타내고 있다. Fig. 7은 GLY3 용액을 가지고 전압을 변화시켜 가면서 얻은 결과인데, 전압이 낮은 경우가 좀 더 균일한 액적분포를 나타냈다. 같은 전압하에서 유량을 증가시키면 어느 정도까지는 하나의 피크를 갖다가 어느 순간에 제 2의 피크가 나타남을 볼 수 있다. 확실히 유량이 증가함에 따라 액적분포의 형태는 이중모드 형태로 천이됨을 알 수 있다. 또한 주목 할만한 사항은 Fig. 7의 3.7kV의 경우를 제외하고 나머지 경우의 스프레이 전류는 어느 정도 코로나 방전이 일어나는 때의 전류에 해당된다는 점이다. 4.5kV에서의 스프레이 전류가 3.7kV일 때보다 오히려 2 배 이상 증가되어 있음을 볼 수 있다. 약한 코로나 방전을 수반한 정전스프레이가 방전이 일어나지 않은 경우에 비해 액적의 생성률을

증가시키고 액적의 크기 및 다분산성(polydisperse)을 약간 증가시킨다. 즉, 스프레이 전류가 99 나노암페어(nA)일 때는 0.39μm이고 1705 나노암페어일 때는 0.40μm에 해당된다. 그리고 코로나 방전의 강도가 어느 한계 이상으로 커지게 되면 Fig. 7에서 볼 수 있듯이, 두번째 피크를 가져오는 불안정한 모드로 천이하게 된다. 이상의 결과로부터 알 수 있는 것은 초기 인가전압에서 일단 안정된 콘젯이 형성된 이후, 전압증가에 의해 발생되는 액적들은 하나의 피크를 갖는 단일 피크분포를 나타낸다. 기존의 비점성이나 점성이 작은 액체의 경우와 마찬가지로<sup>(6)</sup>, 너무 세지 않은 코로나 방전은 점성이 높은 액체의 경우에서도 액체제트의 표면전하의 밀도를 감소시키거나 분무노즐 출구부근에서 전기장의 세기를 약화시킴으로써 안정된 콘제트 모드를 유지할 수 있는 것으로 판단된다. 코로나 방전과 관련하여 Tang 과 Gomez<sup>(26)</sup>는 점성이 작은 물을 사용하여 코로나 방전을 수반한 안정된 콘제트 모드를 얻을 수 있음을 확인하였는데, 본 연구에서는 점성이 높은 액체에서도 이런 사실을 처음으로 확인하였다.

### 3.3 점성이 높은 액체제트로부터 단분산성의 액적 발생

전기 전도성이 가장 높은 GLY4 용액을 가지고 점성이 높은 영역에서 대전된 액체제트의 분열 특성을 조사하였다. 먼저, 액체의 유량을 변화시키면서 액적의 분포를 측정한 결과가 Fig. 8에 나타나

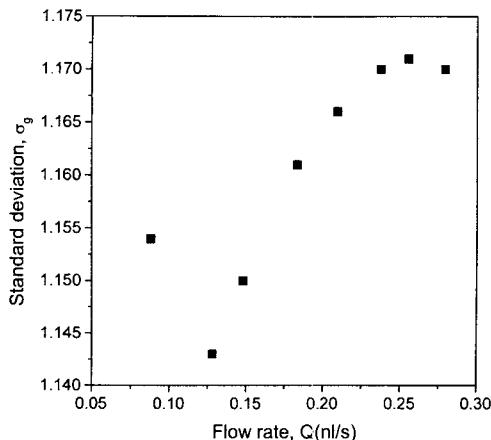


Fig. 10 Geometric standard deviation measured by the aerosizer for various flow rates of GLY4 solution

있다. 이 경우, 콘제트 모드에서의 분열은 0.09에서 0.28 nl/s에 해당하는 유량 범위에서 가능하였다. 콘제트 모드를 형성시키는 최소유량 부근에서 액적의 평균크기는 약 0.3 μm이고 최소유량은 0.09 nl/s로 확인되었다. Fig. 9은 유량(Q)과 액적의 평균크기(d)와의 함수관계를 보여 준다. 평균 액적의 크기는  $d \propto Q^{1/3}$ 의 관계식으로 표현될 수 있음을 알 수 있다. 이 관계식은 전도성이 높고 점성이 작은 액체( $K > 1E-5$  S/m)에 대해 Fernandez de la Mora 와 Loscertales<sup>(7)</sup>에 의해 제시된 식으로서 본 실험 결과가 이 식과 잘 일치한다. 이 결과로부터 Fernandez de la Mora 와 Loscertales 에 의해 제시된 크기식(scaling law)은 점성이 낮은 액체( $\mu < 90$  mPa s)뿐만 아니라 점성이 높은 액체, 글리세롤( $\mu \sim 1000$  mPa s)에 대해서도 적용됨을 알 수 있다. 이 결과는 기존의 크기식이 본 연구에서 높은 점성을 지닌 액체에 대해서 겸증되었다는 점에서 새로운 사실처럼 보인다.

Fig. 10은 유량에 따라 발생되는 액적의 기하학적 표준편차 (geometric standard deviation)를 보여 준다. 0.09에서 0.13 nl/s 유량 범위에서는 표준편차가 유량에 따라 감소하지만 0.13에서 0.23 nl/s 범위에서는 유량증가에 따라 표준편차가 증가한다. 이것은 주어진 노즐-평판 접지극 실험장치 구성에서 최소의 표준편차, 즉 가장 좋은 단분산성을 가져오는 최적의 유량이 존재함을 의미한다. Ganan-Calvo 등<sup>(27)</sup>에 의하면, 비점성 액체제트인 경우, 표준편자는 유량에 감소하나 해바라기 오일의 경우(30°C에서 점성이 21 mPa s), 표준편자는 유량에

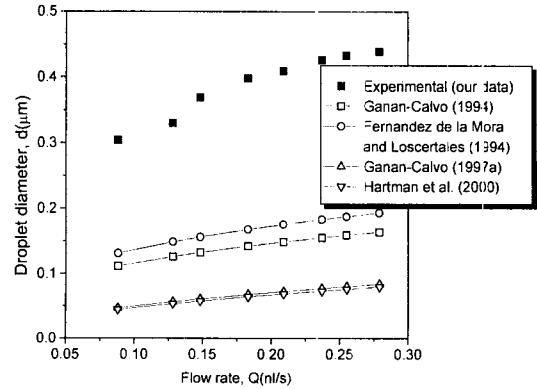


Fig. 11 Comparison of experimental data with the scaling laws

거의 무관하다. 이들의 결과와는 대조적으로 글리세롤 용액의 경우에는 최소유량 부근을 제외하고는 표준편차가 유량에 따라 증가한다. 이 사실은 높은 전하가 점성이 높은 영역에서 액체제트 분열에 미치는 영향으로 설명될 수 있을 것이다. 대전된 고점성 제트는 측면방향 운동보다 제트축방향의 대칭운동을 감쇄시키는 작용을 하지만 대전되지 않은 점성제트나 대전된 비점성제트의 경우에는 오히려 측면방향 운동을 감쇄시킨다. 따라서 글리세롤 용액의 경우, 제트의 분열은 측면방향 불안정성을 가지고 제트의 원주보다 더 큰 파장에서 일어나게 되고 동시에 발생되는 액적의 분포도 다분산으로 나타나게 된다. 이러한 사실은 Saville<sup>(24)</sup>과 Mestel<sup>(25)</sup>에 의해 이론적으로 연구되었고 Hartman 등<sup>(13)</sup>과 구 등<sup>(11)</sup>에 의해서 실험적으로 확인되었다.

#### 3.4 기존의 크기식들과의 비교 및 토의

본 실험에서 측정된 액적의 크기가 기존의 대표적인 크기식들과 어느 정도 일치하는지를 비교하였다. Fernandez de la Mora 와 Loscertales<sup>(7)</sup>는 전도성이 높은 액체( $K > 1E-5$ )에 적용할 수 있는 액적지름의 크기식을 최초로 제시하였는데, 그 식은 다음과 같다.

$$d = G(\varepsilon)r^* \quad (1)$$

$$r^* = (\varepsilon\varepsilon_0 Q / K)^{1/3} \quad (2)$$

$$G(\varepsilon) = -10.9\varepsilon^{-6.5} + 4.08\varepsilon^{-1/3} \quad (3)$$

$$G(\varepsilon) = 1.66\varepsilon^{-1.6} \quad (4)$$

여기서  $r^*$ 는 전기적 특성길이이다. 액적의 평균 크기(d)는  $r^*$ 로 스케일링되고 크기식의 비례상수  $G(\varepsilon)$ 은 식 (3)<sup>(9)</sup>과 (4)<sup>(28)</sup>와 같이 다른 형태로 표현된다. 한편,  $G(\varepsilon)$ 은  $\varepsilon$ 의 함수이면서 또한 다음의 점성인자에 의해 영향을 받는다.

$$\Pi_\mu = (\gamma^2 \rho \tau)^{1/3} / \mu \quad (5)$$

여기서  $\mu$ 는 점성계수,  $\gamma$ 는 표면장력계수,  $\rho$ 는 액체의 밀도,  $\tau$ 는 전기적 이완시간(electrical relaxation time)이다. 크기식 (1)은 점성인자  $\Pi_\mu$ 가 0.1~1.0 보다 큰 액체에 대해서 타당하다고 알려져 있다.<sup>(9), (21)</sup> 한편, Ganap-Calvo<sup>(12)</sup>는 새로운 액적 크기식을 다음과 같이 제시하였다.

$$d = 3.78 * 0.6\pi^{-2/3} Q^{1/2} \left( \frac{\rho \varepsilon_0}{\gamma K} \right)^{1/6} \quad (6)$$

그리고 최근에 Hartman 등<sup>(13)</sup>은 이론적인 액적 크기식을 제시하고 실험적으로 유량과 액적크기와의 관계를 조사하였는데, 그 크기식은 다음과 같다.

$$d \sim \left( \frac{\rho \varepsilon_0 Q^3}{\gamma K} \right)^{1/6} \quad (7)$$

대표적인 4 가지 크기식 (식 (1), (6), (7))이 예측하는 액적의 크기와 실제 본 연구에서 측정한 액적의 크기를 비교한 결과가 Fig. 11에 나타나 있다. 측정된 액적의 크기는 식 (3)과 (4)계수를 사용한 크기식이 예측한 값과는 2 배정도 크고 식 (6)과 (7)이 예측하는 값보다는 6 배정도 크게 나타난다. 본 실험데이타는 최근에 발표된 논문<sup>(11)</sup>에서 그 신뢰성이 입증되었기 때문에 본 실험결과가 기존의 크기식과 차이가 나는 이유는 주로 액체의 점성이 액적크기, 구체적으로는, 액체제트의 분열에 미치는 영향으로 이해될 수 있을 것이다. 먼저, 대전되지 않은 제트의 경우, 점성이 매우 높은 액체에 있어서 액체제트는 원주정도의 길이로 깨어지지 않고 원주길이보다 상당히 긴 불안정성의 파장을 가지고 분열된다고 이론적으로 알려져 있다.<sup>(29)</sup> 이는 곧 대전되지 않은 고점성 액체제트는 대전되지 않은 비점성 액체보다 더 큰 액적들로 깨어짐을 의미한다.

한편, 대전된 비점성 또는 점성이 작은 제트의 경우, 제트 표면에 존재하는 전하량이 너무 크지 않는 한, 액적의 크기에 미치는 전기적 영향은 무시될 수 있다.<sup>(6, 21, 24)</sup> 그러나 전기적으로 대전된 고점성 액체의 경우, 제트표면의 전하와 제트의 점

성이 각각 제트분열에 미치는 영향은 서로 반대적인 성격을 지닌다. 일반적으로, 제트표면의 과다한 전하량은 표면에 수직한 전기적 용력(electrical stress)을 증가시킴으로써 제트를 불안정하게 만드는 경향이 있으며 이는 주로 축방향 분열에서 측면방향 분열을 일으킬 수 있다. 이와는 대조적으로 제트의 점성이 표면의 대부분의 교란을 감쇄시키고 제트분열이 일어나는 파장을 증가시킨다. Saville<sup>(24)</sup>은 점성과 전하량의 복합효과로 인해 액체제트는 점성이 매우 큰 경우 제트의 측면방향 불안정성이 가장 빨리 성장한다고 보고하였다. 이뿐만 아니라, Mestel<sup>(25)</sup>에 의하면, 제로(0) Reynolds 수에 해당하는 극한조건에서, 즉 점성이 매우 높은 제트유동에서 표면전하의 존재로 인해 축면방향 불안정성이 발생하며 표면전하가 증가함에 따라 가장 불안정한 분열모드는 축면방향 분열모드가 되며 이는 축방향 분열모드로부터 천이되어 발생한다. 결론적으로 대전된 액체제트의 높은 점성은 제트의 축방향 불안정성을 감쇄시키고 동시에 축면방향 불안정성을 증가시켜 결국에는 제트의 분열이 제트원주보다 긴 파장에서 발생하여 기존의 크기식이 예측하는 것보다 큰 액적들이 발생하며 이와 동시에 다분산 액적분포가 나타나게 된다. 이러한 본 연구의 결과는 글리세롤보다 점성이 작지만 물보다 점성이 40-50 배 정도 큰 액체를 가지고 실험한 기존의 논문의 결과와 정성적으로 일치한다<sup>(21)</sup>. 이 실험논문에서도 정전분무에 의해 생성된, 점성이 높은 액적의 크기가 기존의 크기식이 예측하는 값보다 크게 나타남을 보고하였다. 현재까지 고점성 액체의 정전분무에 관해 발표된 연구가 거의 없기 때문에 본 연구의 결과를 좀 더 뒷바침하기 위한 연구가 추가로 수행되어질 필요가 있다고 생각된다.

지금까지 제시되어 있는 크기식들은 비점성 액체나 점성이 비교적 작은 액체에 대해서만 검증된 식이기 때문에 글리세롤과 같이 점성이 매우 높은 액체에 대해서도 적용될 수 있는 좀 더 포괄적인 크기식에 관한 연구가 향후 진행되어야 할 것이다

#### 4. 결 론

지금까지 요오드화 나트륨을 첨가한 글리세롤 용액을 사용하여 콘제트모드에서 발생되는 정전분무 액적의 크기분포를 공기역학적 입경 측정기로 측정함으로써 정전분무에 의한 고점성 액체의 액적 생성 특성을 정량적으로 조사하고 기존의 데이타와의 비교를 통한 고점성 액체의 분무특성을 해석하였다. 본 실험결과에 근거하여 주 결론을 다

음과 같이 요약할 수 있다.

(1) 글리세를 용액의 낮은 증기압으로 인해 정전분무에 의해 발생된  $0.3 < d < 1.2\mu\text{m}$ 에 해당되는 글리세를 액적의 크기를 공기역학적 입경 측정기를 이용하여 실시간으로 직접 측정할 수 있다.

(2) 0.3에서  $0.44\mu\text{m}$  범위에 해당하는 단분산 액적들을 유량을 0.09에서 0.28 nl/s로 변화시킴으로써 얻을 수 있다. 안정된 콘제트모드를 가져오는 최소유량은 약 0.09 nl/s이다.

(3) 전도성이 높고 점성이 큰 액체의 경우, 정전분무에 의해 발생된 액적의 크기는 인가전압에 의해 거의 영향을 받지 않으며 코로나 방전을 수반한 정전분무는 방전의 세기가 너무 크지 않는 한 균일한 액적들을 생성시킬 수 있다.

(4) 가장 좋은 단분산성을 가져오는 최적의 유량은 최소유량보다 약간 크며 가장 작은 액적의 크기는 최소유량에서 얻어진다.

(5) 정전분무에 의해 발생된 글리세를 액적의 크기는 기존의 크기식들보다 2배에서 6배까지 높게 나타났는데, 이것은 글리세를 액체의 높은 점성과 제트상의 표면전하가 액체제트의 분열에 미치는 복합효과에 기인한다.

## 후기

본 연구는 과학기술부 국가지정연구실 사업의 일환으로 수행되었으며 이에 관계자 여러분께 감사 드립니다.

## 참고문헌

- (1) Dulcks, Th. and Juraschek, R., 1999, "Electrospray as an Ionization Method for Mass Spectrometry," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 30, pp. 927~943.
- (2) Smyth, W. F., 1999, "The Use of Electrospray Mass Spectrometry in the Detection and Determination of Molecules of Biological Significance," *Trends in Anal. Chem.*, Vol. 18, pp. 335~346.
- (3) Kaufman, S. L., 1998, "Analysis of Biomolecules using Electrospray and Nanoparticle Methods: The Gas-Phase Electrophoretic Mobility Molecular Analyzer (GEMMA)," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 29, pp. 537~552.
- (4) Bailey, A. G., 1988, *Electrostatic Spraying of Liquids*, Research studies press, Great Britain.
- (5) Smith, D.P., 1986, "The Electrohydrodynamic Atomization of Liquids," *IEEE Trans. Ind. Applics.*, Vol. IA-22, pp. 527~535.
- (6) Cloupeau, M. and Prunet-Foch, B., 1989, "Electrostatic Spraying of Liquids in Cone-jet Mode," *J. Electrostatics*, Vol. 22, pp. 135~159.
- (7) Fernandez de la Mora, J. and Loscertales, I. G., 1994, "The Current Emitted by Highly Conducting Taylor Cones," *J. Fluid Mech.*, Vol. 260, pp. 155~184.
- (8) Chen, D. R., Pui, D. Y. H. and Kaufman, S. L., 1995, "Electrospraying of Conducting Liquids for Monodisperse Aerosol Generation in the 4 nm to  $1.8\mu\text{m}$  Diameter Range," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 26, pp. 963~977.
- (9) Chen, D.R. and Pui, D.Y.H., 1997, "Experimental Investigation of Scaling Laws for Electrospraying: Dielectric Constant Effect," *Aerosol Sci. Technol.*, Vol. 27, pp. 367~380.
- (10) Ku, B.K. and Kim, S.S., 2001, "Characteristics of electrospraying of glycerol: viscosity effect," *Abstracis of 2nd Asian Aerosol Conference*, July 1-4, Pusan, Korea, pp. 407~408.
- (11) 구본기, 김상수, 김유동, 이상웅, 2001, "냉각법 및 영상 처리기법을 이용한 서브마이크론 정전분무 액적의 크기분포 측정," *대한기계학회논문집 B*, 제 25 권, 제 10 호.
- (12) Ganan-Calvo, A.M., 1997a, "Cone-jet Analytical Extension of Taylor's Electrostatic Solution and the Asymptotic Universal Scaling Laws in Electrospraying," *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 79, pp. 217~220.
- (13) Hartman, R. P. A., Brunner, D. J., Camelot, D. M. A., Marijnissen, J. C. M. and Scarlett, B., 2000, "Jet Break-up in Electrohydrodynamic Atomization in the Cone-jet Mode," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 31, pp. 65~95.
- (14) Shtyrlin, A.F. (1995) State of the art and future prospects of colloidal electric thrusters. *Proceedings of the 24th International EP Conference* (Moscow, Russia), IEPC pp.97~120.
- (15) Martinez-Sanchez, M. and Pollard, J.E., 1998, "Spacecraft Electric Propulsion-an Overview," *J. Propulsion and Power*, Vol. 14, pp. 688~699.
- (16) Krohn, V. E., 1961, "Liquid metal droplets for heavy particle propulsion," In *Electrostatic Propulsion* (Edited by Langmuir, D.B. et al.), pp. 73-80. Academic Press, New York (Series *Progress in Astronautics and Rocketry*).
- (17) Kidd, P. W., 1968, "Parametric Studies with a Single-Needle Colloid Thruster," *J. Spacecraft and Rockets*, Vol. 5, No. 9, pp. 1034~1039.
- (18) Perel, J., Mahoney, J.F., Moore, R.D. and Yahiku, A.Y., 1969, "Research and Development of a Charged-Particle Bipolar Thruster," *AIAA J.*, Vol. 7, pp. 507~511.
- (19) Zeleny, J., 1917, "Instability of electrified liquid surfaces," *Phys Rev.*, Vol. 10, pp. 1~6.
- (20) Fernandez de la Mora, J., Navascues, J., Fernandez, F. and Rosell-Llompart, J., 1990, "Generation of Submicron Monodisperse Aerosols in Electrosprays," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 21(suppl. 1), S673-S676.
- (21) Rosell-Llompart, J. and Fernandez de la Mora, J., 1994, "Generation of Monodisperse Droplets 0.3 to  $4\mu\text{m}$  in Diameter from Electrified Cone-jets of Highly Conducting and Viscous Liquids," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 25, pp. 1093~1119.

- (22) Fernandez de la Mora, J., 1999, Private Communication.
- (23) Riddick, J. A. and Bunger, W. B., 1970, *Organic Solvents: Physical Properties and Methods of Purification*, 3<sup>rd</sup> Ed., John Wiley and Sons, New York.
- (24) Saville, D. A., 1971, "Stability of Electrically Charged Viscous Cylinders," *Phys. Fluids*, Vol. 14, No. 6, pp. 1095~1099.
- (25) Mestel, A.J. (1996) Electrohydrodynamic Stability of a Highly viscous Jet. *J. Fluid Mech.* **312**, 311.
- (26) Tang, K. and Gomez, A., 1995, "Generation of Monodisperse Water Droplets from Electrosprays in a Corona-Assisted Cone-Jet Mode," *J. Colloid Interface Sci.*, Vol. 175, pp. 326-332.
- (27) Ganan-Calvo, A.M., Davila J. and Barrero, A., 1997, "Current and Droplet Size in the Electrospraying of Liquids: Scaling Laws," *J. Aerosol Sci.* Vol. 28, pp. 249~275.
- (28) Ganan-Calvo, A.M. (1994) The Size and Charge of Droplets in the Electrospraying of Polar Liquids in Cone-Jet Mode and the Minimum Droplet Size. *J. Aerosol Sci.* **25** (Suppl. 1), S309.
- (29) Chandrasekhar, S. (1981) *Hydrodynamic and hydromagnetic stability*, section 111, Dover, New York.