

고주파 열플라즈마 토치를 이용한 Ni 금속 입자의 나노화 공정에 대한 전산해석 연구

남준석¹, 홍봉근¹, 서준호^{1,a}

¹ 전북대학교 고온플라즈마 응용연구센터

Numerical Analysis on RF (Radio-frequency) Thermal Plasma Synthesis of Nano-sized Ni Metal

Jun Seok Nam¹, Bong-Guen Hong¹, and Jun-Ho Seo^{1,a}

¹ High Enthalpy Plasma Research Center, Chonbuk National University, Jeonju 561-756, Korea

(Received April 4, 2013; Revised April 20, 2013; Accepted April 24, 2013)

Abstract: Numerical analysis on RF (Radio-Frequency) thermal plasma treatment of micro-sized Ni metal was carried out to understand the synthesis mechanism of nano-sized Ni powder by RF thermal plasma. For this purpose, the behaviors of Ni metal particles injected into RF plasma torch were investigated according to their diameters (1 ~ 100 μm), RF input power (6 ~ 12 kW) and the flow rates of carrier gases (2 and 5 slpm). From the numerical results, it is predicted firstly that the velocities of carrier gases need to be minimized because the strong injection of carrier gas can cool down the central column of RF thermal plasma significantly, which is used as a main path for RF thermal plasma treatment of micro-sized Ni metal. In addition, the residence time of the injected particles in the high temperature region of RF thermal plasma is found to be also reduced in proportion to the flow rate of the carrier gas. In spite of these effects of carrier gas velocities, however, calculation results show that a Ni metal particle even with the diameter of 100 μm can be completely evaporated at relatively low power level of 10 kW during its flight of RF thermal plasma torch (< 10 ms) due to the relatively low melting point and high thermal conductivity. Based on these observations, nano-sized Ni metal powders are expected to be produced efficiently by a simple treatment of micro-sized Ni metal using RF thermal plasmas.

Keywords: RF (radio-frequency) thermal plasma, Nano, Nickel, Numerical analysis

1. 서 론

최근, 적층형 세라믹 커패시터 (MLCC, multi-layer

ceramic capacitor), 고체산화물 연료전지 (SOFC, solid oxide fuel cell) 등 광범위한 전기전자재료 분야에 걸쳐 나노 크기의 Ni 금속에 대한 관심이 커지고 있다 [1-4]. 특히, 초박층화와 고용량화가 빠르게 진행되고 있는 MLCC 제조 분야에서 내부 전극의 충전율과 소결 특성 향상에 필수적인 200 nm 급 Ni 분말에 대한 연구가 진행된 바 있으며, 일부 초고용량, 초소형 고부가가치 제품의 경우에는 100 nm 이하 분말

a. Corresponding author: jhseo@jbnu.ac.kr

Copyright ©2013 KIEEME. All rights reserved.
This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

의 사용이 예상되고 있다 [1]. 이와 같은 Ni 나노 분말 수요에 대응하여, 열플라즈마법 (thermal plasmas) [5,6], 초음파분무열분해법 (ultrasonic spray pyrolysis) [7], 수열합성법 (hydrothermal process) [8], 용액환원법 [2] 등 다양한 Ni 나노 금속 합성법들이 개발되어 왔다. 이 중에서 열플라즈마를 이용한 Ni 나노 분말 합성은, 유해 폐기물을 발생시키는 종래의 습식법들과는 달리 친환경적이며, 특히 MLCC용 페이스트에 요구되는 높은 충전밀도를 가진 구형 고순도 Ni 입자를 대량 생산할 수 있는 신기술로 최근 크게 주목받고 있다 [5,6].

일반적으로 열플라즈마는 전기 아크 등을 이용하여 발생시킨 이온화된 고온 열유체로서, 재래식 연소 화염에서는 얻을 수 없는 초고온 (Ar 플라즈마의 경우, 8,000 K 이상), 대열용량의 열유동 특성을 쉽게 구현할 수 있기 때문에, 빠른 열 및 물질전달과 급랭기체 등에 의한 급속냉각 ($\sim 10^6$ K/s)이 가능하다는 특징이 있다 [9-11]. 따라서, 열플라즈마의 빠른 열 전달 능력과 결합된 급속냉각 공정은, 기계적 분쇄와 같은 재래식 방법으로는 더 이상의 미분화가 힘든 금속 및 세라믹 분말들을 짧은 시간에 용융, 기화 시킨 후, 응축에 따른 핵생성을 유도할 수 있어 나노크기의 초미세 분말을 얻는 공정에 유용하게 쓰일 수 있다. 이와 같은 초고온 입자 가열, 용융 및 기화 과정에 쓰일 수 있는 열플라즈마 발생기로서는, 이송식 및 비이송식 직류 플라즈마 토치와 전극을 사용하지 않는 고주파 유도결합 플라즈마 토치가 널리 채용되고 있다 [12,13]. 이 중, 고주파 유도결합 플라즈마 토치의 경우, 직류 플라즈마 토치에 비해 상대적으로 넓은 고온영역과 낮은 속도 분포를 가진 열플라즈마 유동장을 형성함으로써, 투입된 Ni 분말들이 균일하게 기화하기에 충분한 온도장과 체류시간을 제공해 줄 것으로 여겨져 왔다. 또한, 이송식 및 비이송식 직류 플라즈마 토치와는 달리, 전극물질 등에 의한 오염원이 없어, 불순물 유입을 최대한 억제할 수 있는 장점이 가지고 있다.

반면, 나노분말 제조에 유리한 고주파 유도결합 플라즈마의 온도장과 속도장은, 플라즈마 가둠관 내경, 유도 코일의 감은 수, 코일 간격 등과 같은 고주파 토치의 설계 변수뿐만 아니라, 원료 물질의 종류와 크기, 고주파 전력, 원료 주입 가스의 유량 등과 같은 다양한 토치 운전조건들의 영향도 강하게 받는 것으로 알려져 있다 [14-18]. 따라서, 고주파 열플라즈마 토치를 이용하여 Ni 나노 입자를 합성하는 공정을 이

해하기 위해서는, 이미 최적화 과정 등을 거쳐 결정된 고주파 토치의 설계변수에 대해, 고주파 입력 전력, 원료 입자 이송 기체의 유량 등과 같은 토치 운전 조건들이 만들어 내는 열플라즈마 온도장 및 속도장을 계산하고, 여기에 투입된 Ni 입자의 입자 크기별 용융 및 기화 과정을 파악하는 것이 필수적이다.

이에 따라, 본 논문에서는 먼저, 플라즈마 가둠관 내경 $D=50$ mm, 유도 코일 감은 수 $N=4$ 회, 코일 간 간격 $D_c=15$ mm로 설계된 고주파 열플라즈마 토치를 선정하여, 고주파 입력 전력 10 kW 및 12 kW 일 때 형성되는 열플라즈마 유동장을 구하였다. 이어서, 위 조건에서 계산된 고주파 플라즈마 유동장 속으로, 2 및 5 slpm의 운반기체 (carrier gas)를 이용하여 지름 1 ~ 100 μm 의 Ni 입자를 토치 중심축을 따라 주입할 경우, 투입된 Ni 입자가 겪게 될 상변화를 입자의 궤적과 함께 살펴보았다. 이를 통해, Ni 입자의 크기와 고주파 입력전력 및 원료입자 운반기체의 유량이 Ni 입자의 용융 및 기화 과정에 미치는 영향을 파악하고, 관련 공정 개발에 있어서 검토해야할 점들을 고찰하였다.

2. 실험 방법

2.1 수치 해석 방법

2.1.1 수치해석 모델 및 가정

고주파 열플라즈마 토치 안에서 발생하는 열플라즈마의 특성을 예측하고 토치 내부에 주입된 Ni 입자의 운동과 상변화 과정을 묘사하기 위해서, 자기유체역학 (MHD, magnetohydrodynamics) 모델을 적용한 열플라즈마 수치해석을 수행하고, 이로부터 계산된 유동장 내에서 입자의 운동방정식과 열 전달 방정식을 풀었다. 이 중, 플라즈마 유체 해석코드는 맥스웰 방정식으로부터 유도된 자기벡터포텐셜에 관한 방정식을, 유체로서의 플라즈마를 묘사하기 위한 질량, 운동량 및 에너지 보존 방정식과 결합하여 반복 계산을 통해 수렴해를 찾는 방식으로 구성하였으며 계산에 사용된 고주파 토치의 구조를 그림 1에 간략히 도시하였다. 그림 1의 원통 좌표계 (r, θ, z) 토치 구조에서 위에서 언급한 각각의 방정식들은 정상 상태의 2차원 축대칭을 가정하였으며, 계산에 사용된 토치의 주요 제원은 표 1에 나타내었다. 이 외, 고주파 유도결합 플라즈마

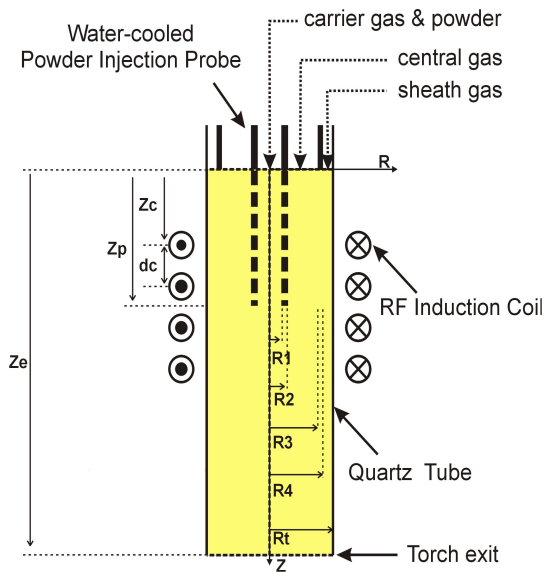


Fig. 1. Computational model for numerical analysis of RF thermal plasma flow.

Table 1. Design and operation parameters for the numerical analysis.

Design parameters	Values
Radii of RF torch :	
R1, R2, R3, R4, Rt [mm]	0.75, 3.175, 20, 22, 25
Lengths of RF torch :	
Zc, Zp, Ze, dc [mm]	27.5, 40.0, 170.0, 15.0
Operation parameters	Values
Flow rates [slpm]	
Carrier gas (Ar)	2, 5
Central gas (Ar)	10
Sheath gas (Ar)	50
RF input power [kW]	6 ~12
RF Frequency [MHz]	4

모델링과 관련된 자세한 수식 및 경계조건에 대한 표현은 참고문헌 [19]를 통해 살펴볼 수 있다.

한편, 마이크로 크기의 Ni 입자들은, 그림 1에 보인 바와 같이, 유도코일의 가운데 지점까지 삽입된 수냉식 분말 주입탐침을 통해 고주파 열플라즈마 토치의 축 방향을 따라 투입되는 것으로 가정하였다.

이 때, 투입된 Ni 입자는 고주파 열플라즈마 토치 내 열유동장을 비행하면서, 주변 플라즈마에 의해 가열되어, 용융 및 기화 과정을 겪을 것으로 예상된다.

Ni 입자가 겪는 이와 같은 플라즈마에 의한 가열 및 상변화 과정에 대한 계산을 간단히 하기 위해서 다음과 같은 사항을 가정하였다.

- ① 원료 입자는 완벽한 구형이다.
- ② 단위 시간 당 원료의 주입량이 매우 작아서, 분말 입자는 열플라즈마에 영향을 미치지 않는다.
- ③ 중력과 점성력만이 열플라즈마 내부에 주입된 입자의 운동에 영향을 미친다.
- ④ 열플라즈마에 의한 입자의 용융과 기화를 구현 하였으나, 냉각에 의한 응고는 고려하지 않았다.
- ⑤ 입자의 반지름이 10^{-10} m 이하로 작아지면, 입자가 소멸되었다고 가정하였다.

2.2 Ni 입자의 운동방정식

위 가정에 따라, 고주파 유도결합 열플라즈마 토치 내에서 비행하는 Ni 입자의 거동은 아래 식 (1) ~ (3)과 같이 표현되는 입자의 운동방정식에 의해서 기술될 수 있다.

$$\frac{du_{pt}}{dt} = -\frac{3}{4} C_D (u_{pt} - u_g) U_R \left(\frac{\rho_g}{\rho_{pt} d_{pt}} \right) + g \quad (1)$$

$$\frac{dv_{pt}}{dt} = -\frac{3}{4} C_D (v_{pt} - v_g) U_R \left(\frac{\rho_g}{\rho_{pt} d_{pt}} \right) \quad (2)$$

$$U_R \equiv \sqrt{(u_{pt} - u_g)^2 + (v_{pt} - v_g)^2} \quad (3)$$

위 식에서 u_{pt} 와 v_{pt} 는 각각 입자의 축 방향과 반경 방향 속도 성분을, u_g 와 v_g 는 입자 주위 플라즈마 기체의 축 방향과 반경 방향 속도 성분을 의미한다.

또한, ρ_{pt} 와 ρ_g 는 입자와 입자 주위 플라즈마 기체의 밀도를 표현한 것이며, d_{pt} 는 입자의 지름을, g 는 중력 가속도를 나타낸다. 한편, 항력계수 (drag coefficient), C_D 는 아래 식 (4)와 같이 표현되는 입자 주위 플라즈마 유동의 레이놀즈 수 (Reynolds number), Re 에 따라 정의 되는데, 표 2에 레이놀즈 수의 범위에 따른 Ni 입자의 항력계수 값을 정리하여 나열하였다.

$$Re \equiv \rho_g U_R d_{pt} / \mu_g \quad (4)$$

위 식 (4)에서 μ_g 는 입자 주위 플라즈마 기체의 점성을 가리킨다.

Table 2. Expression of drag coefficient, C_D , according to Reynolds number.

$C_D = \frac{24}{Re}$	$Re \leq 0.2$
$C_D = \frac{24}{Re} \left(1 + \frac{3}{16} Re \right)$	$0.2 \leq Re \leq 2.0$
$C_D = \frac{24}{Re} (1 + 0.11 Re^{0.81})$	$2.0 \leq Re \leq 21.0$
$C_D = \frac{24}{Re} (1 + 0.189 Re^{0.62})$	$21.0 \leq Re \leq 200$

2.3 열 전달 방정식

고주파 열플라즈마로부터 주입된 Ni 입자 표면에 전달되는 열유속 (heat flux), q'' 은 아래 식 (5)와 같이 Ni 입자 표면 온도, $T_{pt,surf}$ 와 주위 플라즈마 기체의 온도, T_g 사이의 차, ΔT 에 의해 결정된다.

$$q'' = \alpha \Delta T \quad (5)$$

식 (5)에서 α 는 대류 및 복사 열 전달을 고려하여 아래 식 (6)처럼 구성된 열 전달계수 (heat transfer coefficient)이다.

$$\alpha = \alpha_{cv} + \alpha_r \quad (6)$$

여기서, 대류에 의한 열 전달계수, α_{cv} 는 누셀트 수 (Nusselt number), 레이놀즈 수, 프란틀 수 (Prandtl number) 등으로 정의되는 아래 관계식들로부터 구할 수 있다.

$$Nu \equiv \frac{\alpha_{cv} d_{pt}}{\lambda_g} = 2 + 0.6 Re^{\frac{1}{2}} Pr^{\frac{1}{3}} \quad (7)$$

$$Pr \equiv \frac{c_{p,g} \mu_g}{\lambda_g} \quad (8)$$

위 식 (8)에서 $c_{p,g}$ 는 플라즈마 기체의 정압 비열을, λ_g 는 플라즈마 기체의 열전도도를 의미한다. 한편, Ni 입자의 표면을 회색표면 (gray surface)으로 가정하고, 식 (9)처럼 표현되는 슈테판-볼츠만 법칙을 이용하면 식 (6)의 α_r 을 Ni 입자 표면의 방사율 (emissivity), ϵ_{pt} 을 써서, 식 (10)과 같이 표현할 수 있다.

$$q_r = \epsilon_{pt} \sigma_s A (T_{pt,surf}^4 - T_g^4) = \alpha_r A (T_{pt,surf} - T_g) \quad (9)$$

$$\alpha_r = \epsilon \sigma_s (T_g + T_{pt,surf})(T_g^2 + T_{pt,surf}^2) \quad (10)$$

여기서, A 는 입자의 표면적을 나타내고, σ_s 는 슈테판-볼츠만 상수이며, 그 값은 $5.67 \times 10^{-8} \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-4}$ 이다. 곧, 식 (6)에서 대류 열 전달계수, α_{cv} 는 플라즈마 유체 해석 코드로부터 계산된 플라즈마의 온도 및 속도의 함수로 결정되며, α_r 는 플라즈마 기체의 온도 및 Ni 입자의 온도에 따라 계산되는 양이다. 따라서, 플라즈마 유체 해석 코드를 이용하여 고주파 열플라즈마 토치 내 플라즈마 유동장 계산을 수행하고, 이 결과를 바탕으로 식 (5)의 열유속, q'' 을 경계 조건으로 하는 Ni 입자 내부의 열 전달 방정식을 식 (1)~(3)으로 표현된 운동방정식과 함께 풀어봄으로써, 플라즈마 내부로 주입된 Ni 입자의 상변화 거동을 살펴볼 수 있게 된다. 아래 식은 구형으로 가정된 Ni 입자 내부에서 일어나는 열전도를 묘사한 열 전달 방정식이다.

$$\rho_{pt} c_{p,pt} \frac{\partial T_{pt}}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left[\lambda_{pt} r^2 \frac{\partial T_{pt}}{\partial r} \right] \quad (11)$$

여기서, $c_{p,pt}$ 는 Ni 입자의 비열 (specific heat), λ_{pt} 는 Ni 입자의 열전도도 (thermal conductivity)를 의미한다. $c_{p,pt}$ 및 λ_{pt} 를 포함하여, 본 계산에 사용된 Ni 입자의 물성 값을 표 3에 나열하였으며, 이 값들은 모두 참고 문헌 [14,20]으로부터 얻은 것들이다.

Table 3. Physical properties of Ni metal used in the numerical analysis.

Properties	Nickel [14,20]
Density, ρ_{pt}	8,908 kg/m ³
Melting point, $T_{m,p}$	1,728 K
Boiling point, $T_{b,p}$	3,186 K
Latent heat of fusion	2.98×10^5 J/kg
Latent heat of vaporization	6.43×10^6 J/kg
Specific heat capacity, $c_{p,pt}$	444 J/kg · K
Emissivity, ϵ_{pt}	0.2
Thermal conductivity, λ_{pt}	90.7 W/m · K at 300 K 72.2 W/m · K at 500 K 71.8 W/m · K at 1,000 K 80.4 W/m · K at 1,400 K

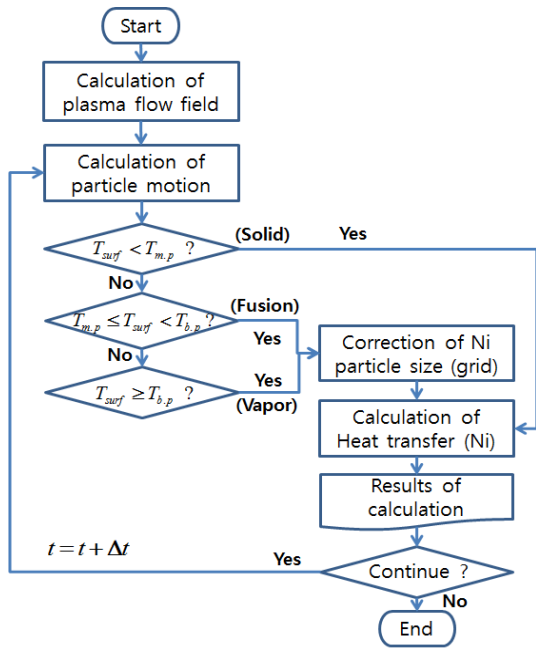


Fig. 2. Algorithm for the calculation on the behaviors of Ni particle injected into RF thermal plasma flow.

수치 계산은 위 식 (11)을 시간 및 공간에 대해 차분화하여 얻은 방정식을 반복법을 통해 수렴해를 얻는 방식으로 진행하였다. 예를 들어, Ni 입자의 내부를 반지름 길이에 따라 N 개의 격자로 나눈 다음, i 번째 격자 노드에서 시간에 대한 미분을 아래 식 (12)와 같이 후방차분에 의해 근사하였으며, i 번째 격자 노드에서 공간에 대한 미분은 식 (13)으로 표현되는 중앙차분법을 적용하였다.

$$\frac{\partial T}{\partial t} \Big|_{i,j} \approx \frac{T_{i,j} - T_{i,j-1}}{\Delta t_j} \quad (12)$$

$$\frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{i,j} \approx \frac{T_{i+1/2,j} - T_{i-1/2,j}}{\Delta r_{i,j}} \quad (13)$$

여기서 i와 j는 각각 차분화된 공간과 시간을 의미한다. 식(12)와 (13)을 통해서 식 (11)의 열 전달 방정식은 아래 식 (14)와 같은 차분 방정식으로 전환되며, 이를 풀어 Ni 입자 내 온도분포를 얻을 수 있다.

$$T_{i+1,j} + b_i T_{i,j} + c_i T_{i-1,j} + d_i = 0 \quad (14)$$

위 식에서 각 계수 항은 입자 내부의 격자 상수들

에 의존하는 값으로 입자가 고체 상태일 때에는 아래와 같이 표현될 수 있다.

$$c_i = \left(\frac{i-1.5}{i-0.5} \right)^2 \frac{\lambda_i + \lambda_{i-1}}{\lambda_i + \lambda_{i+1}}$$

$$d_i = \left(\frac{i-1}{i-0.5} \right)^2 \frac{2(l_m)^2 \rho_i (c_p)_i T_{i,j-1}}{\Delta t (\lambda_i + \lambda_{i+1})} \quad (15)$$

$$b_i = -1 - c_i - \frac{d_i}{T_{i,j-1}}$$

식 (15)에서 l_m 은 입자 내부의 격자 크기를 의미한다. 계산이 진행됨에 따라, 고체 Ni 입자는 액체, 기체 상태로 상변이가 일어날 수 있으며, 이 경우, 식 (14)를 풀이기 위한 Ni 입자 내부 격자들이 수정되어야 한다. 이와 같은 상변이를 포함한 식 (14)에 대한 수치해석 기법으로, 본 논문에서는 Samarskii [21]가 제안한 방법을 사용하였으며, 그림 2에 그 계산 순서를 간략히 순서도 형태로 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

그림 3(a) 및 (b)는 10 kW의 입력 전력 조건에서 생성된 고주파 열플라즈마에 대해, 토치 중심축을 따라 주입된 지름 1 μm ~ 100 μm 범위의 Ni 입자들이 겪는 비행궤적과 크기 및 표면온도 변화를 토치 길이에 따라 나타낸 것이다. 이 그림에서, Ni 입자의 초기 속도는 내경 2.5 mm로 주어진 주입탐침을 통해 2 slpm으로 주입된 운반기체의 유속과 같다고 가정하였다. 특히, 그림 3(a)는 고주파 열플라즈마의 2차원 온도 분포와 속도 벡터를 나타낸 그림 위에, 2 slpm의 운반기체에 의해 주입된 지름 100 μm Ni 입자의 위치 변화를 0.5 ms 시간 간격으로 표현한 것으로, 각각의 원들은 식 (1), (2) 및 (3)을 풀어서 얻은 Ni 입자의 궤적에 따라 배치된 것이다. 또한, 검은색 원은 고체상태의 Ni 입자를, 빨간색 원은 용융상태의 Ni 입자를 의미한다. 먼저, Ni 입자 궤적을 표현한 그림 3(a)로부터, 10 kW의 출력 조건에서 주입된 입자들은 중심축을 따라 거의 직선에 가까운 비행경로를 따라 4 ms 이내의 짧은 시간 동안에 쉽게 가열되어 녹는점 (1,728 K)과 끓는점 (3,186 K)을 거쳐 토치 내에서 완전 기화됨을 확인할 수 있다. 그림 3(b)는 100 μm 보다 더 작은 Ni 입자들은 크기가 작을수록 더 짧은 시간 내에 용융 및 기화 과정을 거칠 것이라는

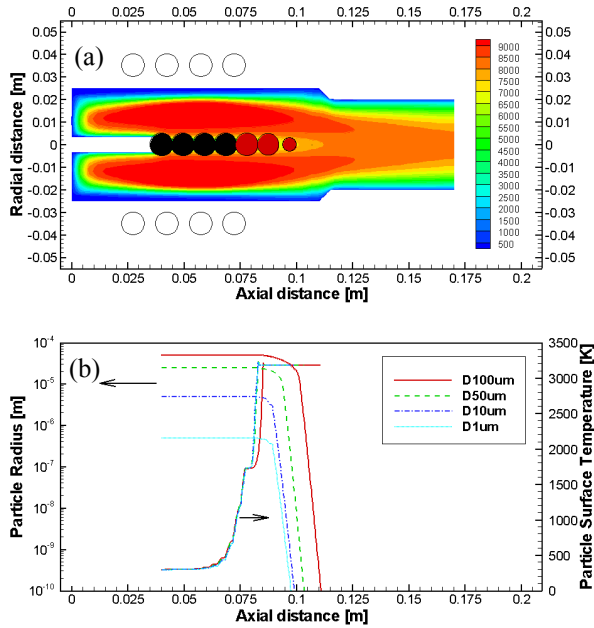


Fig. 3. (a) The behaviors of Ni particles injected into RF thermal plasma with the power level of 10 kW, where the black and red circles represent a 100 μm Ni particle in solid and liquid state, respectively, and their arrangement is set at the interval of 0.5 ms along the trajectory of Ni particle, (b) the distributions of sizes and surface temperatures of Ni particles with sizes of 1 ~ 100 μm according to their flight time. Each curve is traced after injection into RF thermal plasma. (The flow rates of plasma forming gas and carrier gas are fixed at 60 and 2 slpm, respectively.)

점을 알려준다. 그림 3(a) 및 (b)의 결과로부터, 길이 170 mm, 출력 10 kW의 고주파 열플라즈마 토치 내에 주입된 최대 100 μm 크기의 Ni 입자들은 토치 내 비행 중, 축 방향으로 약 110 mm 지점, 곧, 분말주입 탐침구로부터 70 mm 떨어진 곳 이내에서 대부분 완전 기화된 다음, 토치 출구를 빠져나간다는 것을 알 수 있다.

그림 4(a) 및 (b)는 그림 3(a) 및 (b)와 같은 조건에서, 운반기체 유량만 5 slpm으로 증가시켜 계산한 결과를 도시한 것이다. 그림 4(a) 및 (b)로부터, 5 slpm의 운반기체를 통해 주입된 Ni 입자들은 크기에 상관없이 축 방향으로 약 125 mm 아래 지점을 지나서야 1,000 K 이상의 온도로 가열되기 시작하여, 토치 출구 근처에서 끓는점인 3,186 K에 도달하지만,

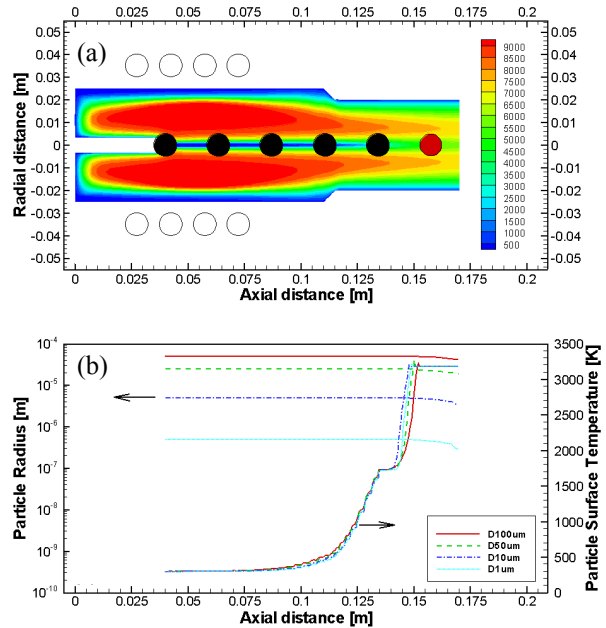


Fig. 4. (a) The behaviors of Ni particles injected into RF thermal plasma with the power level of 10 kW, where the black and red circles represent a 100 μm Ni particle in solid and liquid state, respectively. And, their arrangement are set at the interval of 0.5 ms along the trajectory of Ni particle, (b) the distributions of sizes and surface temperatures of Ni particles with sizes of 1 ~ 100 μm according to their flight time. Each curve is traced after injection into RF thermal plasma. (The flow rates of plasma forming gas and carrier gas are fixed at 60 and 5 slpm, respectively.)

이 경우도, 입자 표면의 일부만 기화된 뿐 거의 크기 변화 없이 토치를 빠져나간다는 것을 알 수 있다. 운반기체 유량에 따른 그림 3 및 4의 상반된 결과는 토치의 중심축을 따라 주입된 운반기체 유량의 증가가 중심축 부근 플라즈마 유동장을 냉각시키는 역할 뿐만 아니라 축 방향 속도를 빠르게 하여, 주입된 Ni 입자들의 체류시간을 줄이기 때문에 일어난다. 이러한 중심축 영역에서의 온도감소와 속도증가 경향은 두 가지 서로 다른 운반기체 유량 (2 및 5 slpm)에 대해, 플라즈마 온도 분포와 중심축에서의 축 방향 속도 분포를 비교하여 도시한 그림 5(a) 및 (b)에서 잘 확인할 수 있다.

그림 6(a) 및 (b)는 주입된 Ni 입자의 궤적이 집중되는 토치 중심축에서의 플라즈마 온도 및 속도 분포

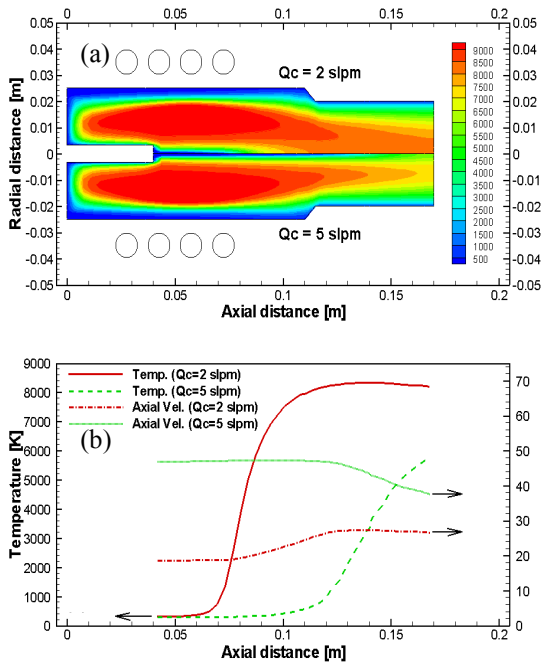


Fig. 5. Comparison of (a) temperature fields and (b) axial velocity and temperature distributions along the centerline between RF thermal plasma flow for $Q_c=2$ and 5 slpm. (RF input power is set of 10 kW and the flow rate of plasma forming gas is fixed at 60 slpm).

를 고주파 입력 전력의 증가에 따라 플라즈마 유체 해석코드를 이용하여 계산한 것이다. 이 그림에서 고주파 입력 전력은 6 kW에서 12 kW까지 변화하며, 플라즈마 기체 유량은 60 slpm, 분말이송기체 유량은 Ni 주입 없이 2 slpm으로 고정되었다. 또한, 그림 7(a) 및 (b)는 그림 6(a) 및 (b)와 같은 조건에서 계산한, 토치 출구에서의 플라즈마 온도와 축 방향 속도 성분의 반경방향 분포를 나타낸 것이다.

먼저, 그림 6(a) 및 (b)로부터, 고주파 입력 전력이 상승함에 따라 중심축에서 플라즈마의 온도와 속도는 모두 증가하는 경향을 보이지만, 온도보다는 속도의 증가가 더 크게 나타나는 것을 관찰할 수 있다. 예를 들어, 고주파 입력 전력을 6 kW에서 12 kW까지 두 배 증가시켰을 때, 토치 출구에서 플라즈마 온도는 7,400 K에서 8,200 K로 10.8% 상승한 반면, 축 방향 유동속도는 15 m/s에서 23 m/s로 53.3% 가량 증가하였다. 이러한 현상은 그림 6(a) 및 (b)에 묘사된 바와 같이, 토치 중심축을 따라 주입된 차가운 운반기체가

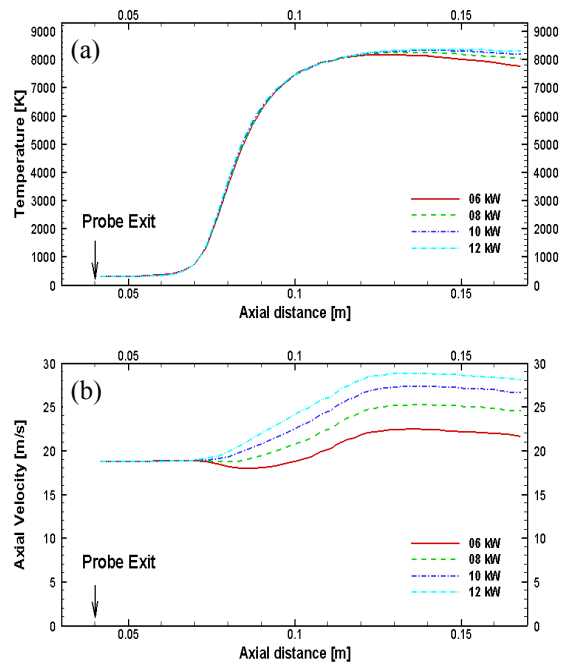


Fig. 6. Axial distributions of plasma temperatures (a) and axial velocities, (b) according to the variations of RF input power from 6 to 12 kW. (The flow rates of plasma forming gas and carrier gas are fixed at 60 and 2 slpm, respectively.)

고출력 플라즈마일수록 빨리 가열되어 상대적으로 빠른 속도로 토치를 관통해 나갈 수 있기 때문에 나타난 것으로 보인다.

반면, 그림 7(a) 및 (b)는 고주파 입력 전력 증가에 따른 이러한 온도 및 속도 증가 경향이 특히 중심축 부근에서 나타나는 현상이며, 가둠관 벽쪽으로 접근하면 이와는 반대로 속도 차는 감소하고 상대적으로, 온도 차가 더 커진다는 것을 보여준다. 중심축을 벗어나서 온도가 커지는 것은 이 부근에서 형성되는 표피 깊이 (skin depth) 내, 주열 발열 때문이며, 축 방향 속도 감소는 가둠관 벽에서 속도가 0이라는 No slip 조건을 반영한 결과이다.

따라서, 고주파 열플라즈마 토치의 중심축을 따라 Ni 금속을 가열시키는 공정에서, 플라즈마 토치의 출력을 증가시키는 것은 중심축에서 Ni 금속의 온도를 빨리 상승시켜 용융 및 기화가 일어나도록 하는데 유리한 역할도 하지만, 관통 속도도 증가시켜 Ni 금속이 고온 영역에서 머무는 체류시간을 단축시키는 역

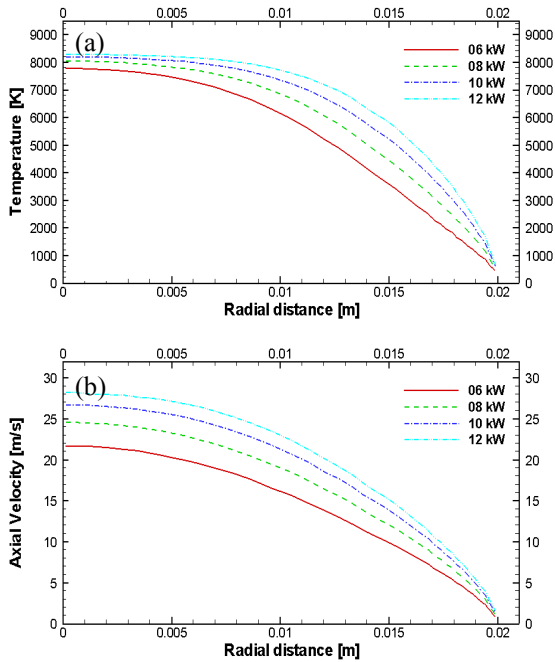


Fig. 7. Radial distributions of plasma temperatures (a) and axial velocities (b) at torch exit according to the variations of RF input power from 6 to 12 kW. (The flow rates of plasma forming gas and carrier gas are fixed at 60 and 2 slpm, respectively.)

할도 할 것으로 예상된다. 또한, 고주파 열플라즈마는 중심축을 벗어난 표피 깊이 영역에서 대부분의 에너지를 흡수하는 방식을 가지고 있기 때문에, 증가 시켜준 고주파 출력이 중심축을 가열하는 것 이외에도, 가동관 벽쪽으로의 열 전달 (그림 7(a))이나 복사 열 손실도 함께 상승시킬 수도 있다.

그림 8은 이와 같은 고주파 입력 전력의 단순 증가가 Ni 입자의 플라즈마 내 거동에 미치는 영향을 알아보기 위해, 입력 전력 12 kW 조건에서, 그림 4(a)에 나타난 바와 같이, 5 slpm의 운반기체에 의해 주입된 지름 100 μm Ni 입자의 위치 변화를 고주파 열플라즈마의 2차원 온도 분포 그림 위에 0.5 ms 시간 간격으로 표현한 것이다. 그림 8과 그림 4(a)의 비교로부터, 고주파 입력전력 10 kW 대비 20%의 전력 증가는, 중심축에서의 플라즈마 온도 상승에도 불구하고, 함께 증가하는 속도 때문에, 100 μm Ni 입자의 용융 및 기화 과정 개선에 별다른 영향을 미치지 않는 것을 관찰할 수 있다.

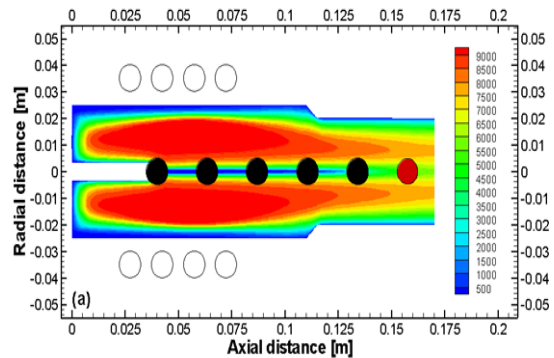


Fig. 8. The behaviors of Ni particles injected into RF thermal plasma with the power level of 12 kW, where the black and red circles represent a 100 μm Ni particle in solid and liquid state, respectively. And, their arrangement are set at the interval of 0.5 ms along the trajectory of Ni particle. (The flow rates of plasma forming gas and carrier gas are fixed at 60 and 5 slpm, respectively.)

곧, 그림 6 및 7의 고주파 출력 증가에 대한 중심축 부근 속도 및 온도의 증가 경향 특성 때문에, 5 slpm의 운반기체를 이용해 주입된 Ni 입자들은, 출력 증가에도 불구하고, 주변 플라즈마에 의해 충분히 가열되지 못한 채, 토치 출구를 상대적으로 빠르게 빠져 나갈 것으로 예상할 수 있다. 그림 8의 결과로부터, 고주파 열플라즈마를 이용한 Ni 나노 금속의 성공적인 합성을 위해서는, 고주파 출력의 증가와 함께 운반기체 유량을 최소화하여, 중심축 온도 상승 뿐 아니라, 축 방향 속도 감소에 의한 비행시간 증대가 동시에 이루어져야 함을 알 수 있다.

4. 결론

입력 전력 10 및 12 kW일 때, 고주파 열플라즈마 토치 내부에서 형성되는 열유동장을 구한 다음, 지름 1 ~ 100 μm 의 Ni 입자를 2 및 5 slpm의 운반기체를 이용하여 토치 중심축을 따라 주입할 경우, 투입된 Ni 입자가 겪게 될 크기 및 상변화를 입자의 궤적과 함께 간단한 수치해석을 통해 살펴보았다. 계산 결과, 먼저, 투입된 입자들은 대부분 토치 중심축 방향을 따라 비행하면서 주변 플라즈마에 의해 가열되어 나

감을 확인하였다. 특히, 운반기체의 유량이 2 slpm으로 상대적으로 작아서, 중심축에서의 플라즈마 속도가 느리고, 이에 따라, 플라즈마 토치 내에서의 체류시간이 길어지면, 1 ~ 100 μm 의 Ni 입자들은 그 크기에 상관없이, 대부분 토치 내부에서 완전 기화됨을 관찰하였다. 반면, 5 slpm으로 운반기체 유량이 증가하면, 100 μm 크기의 Ni 입자들은 입자 표면의 일부만 기화될 뿐 거의 크기 변화 없이 토치를 빠져나간다는 것을 알 수 있었다. 이와 같은 결과는 토치의 중심축을 따라 주입된 운반기체 유량의 증가가 중심축 부근 플라즈마 유동장을 냉각시키는 역할 뿐만 아니라 축 방향 속도를 증가시켜, 주입된 Ni 입자들의 체류시간을 줄이기 때문에 일어나는 것으로 해석되었다. 한편, 고주파 입력 전력의 증가는, 입자들의 궤적이 집중되는 중심축에서의 플라즈마 온도를 높이는 역할도 하지만, 축 방향 속도도 증가시키는 경향이 있을 것으로 예측되었다. 이에 따라, 고주파 입력전력을 10 kW에서 12 kW로 증가시키면, 주입된 차가운 운반기체를 좀더 가열하는 역할과 함께 체류시간도 감소시킴으로써, 100 μm Ni 입자의 용융 및 기화 과정에는 별다른 영향을 미치지 못함을 관찰할 수 있었다. 따라서 투입된 Ni 입자들을 고주파 열플라즈마 토치를 이용하여 나노 Ni 입자로 가공하기 위해서는, 입자들의 궤적이 집중되는 중심축 영역에서의 플라즈마 온도는 높이고 속도는 줄일 수 있도록, 고주파 열플라즈마 토치의 운전 조건 측면에서는 고주파 입력 전력은 증가시키고 운반기체 유량은 최소화해야 하며, 토치의 설계에 있어서는 플라즈마 가둠관 반경 및 분말주입탐침의 내경을 크게 하는 것이 유리할 것이라 여겨진다.

감사의 글

본 논문은 교육과학기술부 재원으로 전북대학교 고온 플라즈마 응용연구 센터 구축 사업단의 지원을 받아 수행되었습니다. 또한, 본 연구는 2012년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원 (KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (No.2011- 501010030)

REFERENCES

- [1] J. O. Hong, S. H. Kim, and K. H. Hur, *J. Kor. Ceram. Soc.*, **46**, 161 (2009).
- [2] K. M. Kim, J. H. Lee, S. M. Yoon, Y. K. Lee, H. C. Lee, and J. Y. Choi, *J. Kor. Ceram. Soc.*, **42**, 649 (2005).
- [3] J. J. Jing, J. M. Xie, H. R. Qin, W. H. Li, and M. M. Zhang, *Adv. Mat. Res.*, **531**, 211 (2012).
- [4] S. Takeoka, and Y. Mizuno, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **50**, 09NC06 (2011).
- [5] D. W. Jung, S. M. Oh, and D. W. Park, *Korean Chem. Eng. Res.*, **46**, 701 (2008).
- [6] S. Son, M. Tahery, E. Carpenter, V. G. Harris, and M. E. McHenry, *J. Appl. Phys.*, **91**, 7589 (2002).
- [7] B. Ebin and S. Gurmen, *Kona Powder Part. J.* **29**, 134 (2011).
- [8] C. W. Won, J. H. Lee, H. I. Won, and H. H. Lee, *J. Kor. Inst. Met. & Mater.*, **44**, 186 (2006).
- [9] M. I. Boulos, P. Fauchais, and E. Pfender, *Thermal Plasmas : Fundamentals and Applications, Volume 1*, (Plenum Press, New York and London, 1994)
- [10] P. Fauchais and A. Vardelle, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **25**, 1258 (1997).
- [11] J. Heberlein, *Pure & Appl. Chem.*, **74**, 327 (2002).
- [12] J. H. Seo and B. G. Hong, *Nucl. Eng. Technol.* **44**, 9 (2012).
- [13] M. I. Boulos, J. Jurewicz, and J. Guo, *US Patent 8013269 B2*.
- [14] P. Proulx, J. Mostaghimi, and M. I. Boulos, *Plasma Chem. Plasma Process.*, **7**, 29 (1987).
- [15] M. Shigeta, T. Watanabe, and H. Nishiyama, *Thin Solid Films*, **457**, 192 (2004).
- [16] N. Y. Mendoza-Gonzalez, M. El. Morsli, and P. Proulx, *Mater. Sci. Eng. C*, **27**, 1267 (2007).
- [17] D. Bernadi, V. Colombo, E. Ghedini, A. Mentrelli, and T. Trombetti, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **33**, 424 (2005).
- [18] M. I. Boulos, *Pure & Appl. Chem.*, **57**, 1321 (1985).
- [19] J. H. Park and S. H. Hong, *J. Korean Phys. Soc.*, **31**, 753 (1997).
- [20] D. R. Lide, *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 89th Ed.*, (CRC Press, 2008) p. 2736.
- [21] A. A. Samarskii, *Introduction to the Theory of Difference Scheme* (Nauka, Moscow, 1971) p. 275.