

<학술논문>

DOI <https://dx.doi.org/10.3795/KSME-B.2017.41.1.037>

ISSN 1226-4881(Print)
2288-5324(Online)

수직 진동을 이용한 가열된 고체표면 위 증발하는 액적의 내부유동 제어연구

박 창 석* · 임 희 창**

* 부산대학교 기계공학부

Study of the Internal Flow and Evaporation Characteristic Inside a Water Droplet on a Vertical Vibrating Hydrophobic Surface

Chang-Seok Park* and Hee-Chang Lim**

* School of Mechanical Engineering, Pusan Nat'l Univ.

(Received September 3, 2016 ; Revised November 1, 2016 ; Accepted November 9, 2016)

Key Words: Hydrophobic Surface(소수성 표면), Marangoni Flow(마랑고니 유동), Deionized Water(탈이온수), Flow Visualization(유동가시화), Resonance Frequency(공진 주파수), Coffee-stain Effect(커피 얼룩효과)

초록: 가열된 표면에서의 액적은 일반적으로 내부에 마랑고니 유동이 발생하고, 이는 불균일한 침전물 패턴 형상을 구성하게 된다. 본 연구는 마랑고니 유동을 가시화하고, 수직진동을 사용해서 이를 제어하는 것을 주 목적으로 한다. 액적이 증발하는 동안, 액적의 접촉각 변화와 부피변화를 실험적으로 알 수 있었고, PIV(Particle Image Velocimetry) 실험 장치를 이용하여, 평판 온도별 마랑고니 유동의 내부 유동의 흐름을 가시화하였다. 그리고 평판에 각 주파수별 수직진동을 가해주는 실험을 진행하여, 그 결과 마랑고니 유동의 유동 방향과 수직진동의 유동 방향이 서로 반대인 것을 확인할 수 있었다. 마지막으로 증발하는 액적에 수직진동을 가해줌으로써, 액적의 하단부분에서 내부유동의 흐름변화를 관찰하였다. 마랑고니유동에 의해 발생하는 내부유동 방향과 수직진동으로 발생하는 내부유동의 방향이 서로 반대 방향이므로 가열된 평판에 진동을 가해주었을 때 액적 내부유동의 흐름이 변화가 발생하였고, 이는 곧 불균일한 침전물 패턴이 억제된 것을 증발 후 침전물의 패턴형상을 통해 확인할 수 있었다.

Abstract: Thermal Marangoni flow has been observed inside droplets on heated surfaces, finally resulting in a coffee stain effect. This study aims to visualize and control the thermal Marangoni flow by employing periodic vertical vibration. The variations in the contact angle and internal volume of the droplet as it evaporates is observed by using a combination of continuous light and a still camera. With regard to the internal velocity, the particle image velocimetry system is applied to visualize the internal thermal Marangoni flow. In order to estimate the internal temperature gradient and surface tension on the surface of a droplet, the theoretical model based on the conduction and convection theory of heat transfer is applied. Thus, the internal velocity increases with an increase in plate temperature. The flow directions of the Marangoni and gravitational flows are opposite, and hence, it may be possible to control the coffee stain effect.

- 기호설명 -

f_n : n차 모드에서의 고유 진동수

R : 액적의 반지름

γ : 표면장력

ρ : 액적의 밀도

r_0 : 접촉원의 반지름

† Corresponding Author, hclim@pusan.ac.kr

© 2017 The Korean Society of Mechanical Engineers

1. 서론

액적의 증발 현상에 대한 연구는 오래 전부터 많은 연구자들에게 흥미로운 문제로 다루어져 왔으며, 기초/응용 및 화학/기계공학 분야에서 많은 연구와 관심이 이루어져왔다. 자연적으로 고체 표면 위에 올려진 액적이 증발할 때 액체-기체 계면에서 온도구배가 생성되는데, 이는 표면장력 구배를 유발하여 액적 내부에 유동을 생성시킨다.⁽¹⁾ 이를 마랑고니유동 혹은 열모세관유동이라고 한다. 이러한 현상은 에탄올, 메탄올, 아세톤, n-pentane 등의 액체에서 관찰되며, 순수한 물에서의 마랑고니 유동은 매우 약하고 보통의 실험에서 관찰하기가 용이하지 않기 때문이라고 보고되고 있다.⁽²⁾ 그리고 마랑고니 유동은 커피얼룩 효과 (coffee stain effect)를 발생시키는 것으로 알려져 있다. 특히, 이 현상은 액적의 증발 초기 접촉선이 고정된 상태로 접촉각이 점차 감소하는 단계에서 마랑고니 유동으로 인하여 침전물들이 액적의 외곽지역에 많이 쌓이면서 발생하는 현상으로 잘 알려져 있다.^(3,4,5) 이러한 현상을 기반으로 증발하는 액적내부에 발생하는 마랑고니 유동을 이용하여 액적에 포함된 부유물의 증발 후 침전 패턴에 대한 다양한 변화를 만들어내게 된다. 이와 관련, Wang 등⁽⁶⁾은 마랑고니 유동을 이용하여 기판 위에 다공성 박막 패턴을 만들어 내었다. Truskett 등⁽⁷⁾은 액적 내부의 계면활성제 (Surfactant)의 농도를 변화시킴으로써 액적의 표면장력 차이를 발생시키고, 기판 위 입자증착 (particle deposition)을 통하여 여러 가지 다양한 패턴을 연구하였다. 이 외에도 마랑고니 유동은 코팅 (coating),⁽⁸⁾ 박막증착 (thin film deposition),⁽⁹⁾ 결정성장 (crystal growth)⁽¹⁰⁾ 및 잉크젯프린팅,⁽¹¹⁾ 그리고 생체분자배열⁽¹²⁾ 과 같은 많은 공학적 분야에서 응용되고 있다.

최근 마랑고니 유동억제를 통하여 액적의 증발 후 잔존하는 침전물의 패턴 변화에 대한 많은 연구결과들이 발표되고 있다. 기존의 연구들 중 일부는 액적에 계면활성제를 첨가하거나,⁽¹³⁾ 고주파 대역의 음파를 사용하였을 때,⁽¹⁴⁾ 증발 후 침전물의 패턴이 균일하게 형성되었다고 보고한 바 있다. 하지만, 가열된 평판에서 발생하는 마랑고니 유동을 억제하여 침전물 패턴의 변화에 대한 연

구는 현재까지 보고된 바 없다. 따라서 본 연구에서는 가열된 소수성 평판에 놓인 반구형상의 액적이 증발하는 특성을 관찰하고, 증발로 인해 유발되는 액적 내부 유동을 가시화하고자 하였다. 특히, 기존 연구들을 기반으로 마랑고니 유동과 유동방향이 반대인 수직방향의 기계적 진동을⁽¹⁵⁾ 이용하여 균일한 침전물 패턴을 얻고자 하였다.

2. 이론적 배경

2.1 온도차에 의해 발생하는 마랑고니 유동

모든 열전달을 지배하는 기본 법칙은 일반적으로 에너지 보존법칙이라는 열역학 제 1법칙이다. 그러나 내부에너지 U 는 그 양을 측정할 때와 시뮬레이션을 사용할 때 문제가 발생한다. 그러므로 기본적인 열역학 1법칙에서 온도 T 의 관점으로 수식을 다시 재정리해보면, 유체에서 열 방정식은 식 (1)과 같다.⁽¹⁶⁾

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + (u \cdot \nabla) T = -(\nabla \cdot q) + \tau : S - \frac{T}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial T} \left| \frac{\partial p}{\partial t} + (u \cdot \nabla) p + Q \right. \quad (1)$$

여기서, ρ 는 밀도, C_p 는 정압비열, T 는 절대온도, u 는 속도벡터, q 는 전도열유속, p 는 압력, τ 는 점성응력 텐서, S 는 변형률 텐서 ($S = \frac{1}{2} \nabla u + (\nabla u)^T$)이다. 식 (1)은 열역학 법칙을 사용하여 도출되었고, 질량은 항상 보존되는 것을 전제로 하고 있으며 이는 식 (2)와 같이 밀도와 유속이 관련 있는 것을 의미한다.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho u) = 0 \quad (2)$$

식 (3)은 열전도의 푸리에 법칙으로 전도성 열유속 q 는 온도구배에 비례하는 것을 의미한다. 여기서, k 는 열전도율이며, 텐서로 표현하면 식 (4)와 같다.

$$q_i = -k \frac{\partial T}{\partial x_i} \quad (3)$$

$$k = \begin{bmatrix} k_{xx} & k_{xy} & k_{xz} \\ k_{yx} & k_{yy} & k_{yz} \\ k_{zx} & k_{zy} & k_{zz} \end{bmatrix} \quad (4)$$

전도성 열유속은 다음 식 (5)와 같이 표현할 수 있다.

$$q_i = - \sum_j k_{ij} \frac{\partial T}{\partial x_j} \quad (5)$$

식 (1)에서 우변 2항은 유체의 점성 가열을 나타낸다. “:”와 같은 경우 식 (6)의 형식으로 기술할 수 있다.

$$a : b = \sum_n \sum_m a_{nm} b_{nm} \quad (6)$$

식 (1)의 우변 3항은 단일 압축에서 유체를 가열하기 위한 압력의 일을 나타내는데, 이는 낮은 마하수의 흐름에 비해 일반적으로 작다. 또한 고체의 열탄성 효과를 설명하기 위해 사용할 수 있다. 식 (1)에 식 (2)를 적용하여 점성 가열과 압력의 일에 관한 항을 소거하면, 열 방정식을 식 (7)과 같이 나타낼 수 있다.

$$\rho C_P \frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_P \mu \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q \quad (7)$$

식 (7)의 열전달 항에서 유체의 열전달 특징은 온도 T에 의해 풀 수 있으며, 만약 유속이 0일 경우, 순수한 전도성 열전달을 지배하는 방정식을 식 (8)과 같이 얻을 수 있다.

$$\rho C_P \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot (-k \nabla T) = Q \quad (8)$$

가열된 표면 위 액적내부의 등온선과 그 온도 구배에 대하여 상용 CFD 프로그램인 COMSOL을 사용하여 수치해석을 진행하였다. 수치해석의 편의를 위해 액적의 증발에 따른 순간적인 부피 감소는 고려하지 않았다. Fig. 1은 수치해석에 사용된 조건으로 구리금속 표면에 40°C(313K)의 온도 조건을 가하고 반구형상의 4°C(277K) 액적을 위치시켜 열전도에 따른 내부 등온선과 온도구배를

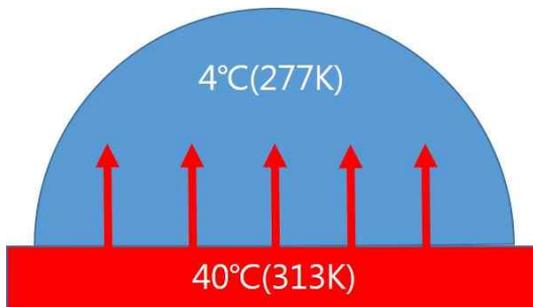


Fig. 1 Schematic diagram of heat conduction inside droplet

열전달 방정식 식 (1)을 이용하여 계산하였다. 이때 수치해석을 위해 사용된 격자는 삼각격자 (triangular grid)이고, 총 격자의 수는 26,800개로 구성하였다.

식 (9)는 Guggenheim-Katayama 식이며, 이는 표면장력은 온도의 영향을 받는다는 것을 나타낸다.

$$\sigma = \sigma^* \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^n \quad (9)$$

여기서 σ 는 표면장력이고, T_c 는 임계온도이며 σ^* 는 T_c 에서의 표면장력을 그리고 n 은 매개변수를 나타낸다. 액적의 전체적인 내부온도는 액적 내부의 위치에 따라 불균일하게 분포하며, 특히 액적의 표면에서는 표면장력이 균일하지 않다.

증발하는 액적내부의 마랑고니 유동은 반구형상의 세로축 단면을 봤을 때, 액적의 중심축에서 상단에서 바닥면으로 내려가고, 액적의 표면을 따라 상승하는 유동방향을 가지고 있는데, 이는 가열된 표면과 액적의 상단의 온도차에 의해서 발생하는 것으로 알려져 있다.⁽¹⁷⁾

2.2 액적의 강제진동이론

강제 진동에 의한 액적의 모드 주파수는 이론적 공식에 의해 이론값을 구할 수 있다. 비점성 및 비압축성의 특징을 가지는 자유 액적이 낮은 진폭 영역(lower amplitude)에서 액적의 표면의 속도 포텐셜(velocity potential)은 라플라스 공식(Laplace equation)과 경계 조건(boundary condition equation)을 만족한다. 입체 기하학적으로 진동하는 액적의 표면 위의 임의의 지점을 구 좌표계 (r, θ, ϕ) 로 나타낼 수 있으며 이는 표면 조화 함수

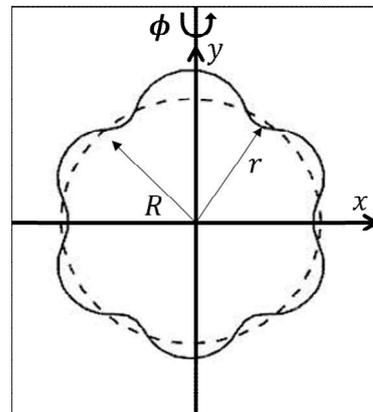


Fig. 2 Descriptive diagram of a droplet in a fluid medium on a wetted substrate

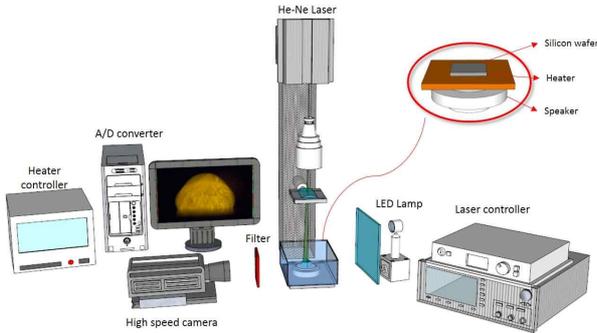


Fig. 3 Experimental setup for visualizing droplets

(surface harmonic function)로써 표현 된다. Fig. 2를 보면 액적의 중심을 원점으로 하여 표면은 다음과 같이 나타낼 수 있다. n 차 형상 모드는 둥근 돌출부(lobe)의 수에 따라 2, 4, 6, 8차 형상 모드로 표현될 수 있다.⁽¹⁸⁾ 라플라스 공식과 경계 조건에 n 차 표면 함수를 전개하면 공진 주파수($f_n = \frac{\omega_n}{2\pi}$)와 액적의 반지름과의 관계는 아래와 같이 표현될 수 있다.

$$f_n = \frac{\sqrt{\sigma n(n-1)(n+2)/\rho R^3}}{2\pi} \quad (10)$$

3. 실험장치 및 방법

3.1 실험장치 및 조건

본 실험에서 소수성 표면을 가지는 실리콘 웨이퍼(silicon wafer)를 만들기 위해 6 wt% Teflon AF(601S2-100-6, Dupont)을 불화탄소 용매(FC-40, 3M)에 희석하여 농도 0.6 wt%인 Teflon 용액을 제조하여, 500rpm에서 5초간, 2000rpm에서 30초간 스핀 코팅하였고, Teflon 박막의 접착력(adhesion)을 강화시키기 위해 165°C 핫플레이트에서 60분 간 베이킹(baking)하였다. 그 결과 약 100nm 정도의 코팅두께를 생성하였다. 액체는 탈이온수(deionized water)를 사용하였으며 액적의 크기는 5 μ l이고, 디지털 접촉각 측정기(CAM 100, KSV)를 사용하여 액적의 평형 접촉각(equilibrium contact angle)을 측정하였다. 그 결과 액적과 소수성 표면의 평균 접촉각은 110° \pm 3°라는 것을 확인할 수 있었다.

일정한 온도로 실리콘 웨이퍼를 가열해주기 위해 열기관을 사용하였고, 주기적인 강제 가진을 위해 스피커(HIAX32C20-8, HiWave) 표면에 앞서

표면코팅 처리한 실리콘 웨이퍼 표면을 접촉제로 붙인 후 설치하였다. 가진 주파수와 여러 가지 전압 인가를 위해서 함수 발생기(function generator, 33522A, Agilent)를 사용하여 일정한 정현파(sinusoidal wave), 특정 주파수와 전압을 인가할 수 있도록 설치하였다. 본 스피커에 인가한 전압은 실효값(root mean squared)으로 모든 실험은 2Vrms으로 진행되었고, 초고속카메라(FASTCAM SA3 120K, Photron)를 고체 표면과 동일선상과 액적의 위에 위치시켜 측면(side view)에서 증발에 따른 액적의 접촉각 변화와, 내부유동을 관찰할 수 있도록 설치하였다. 본 실험의 시스템 구성은 Fig. 3과 같다. 미세 바늘(33 gage)이 연결된 주사기(500ml, Hamilton)를 실린지 펌프(Legato, kd Scientific)에 연결하여 증류수 5 μ l를 자중에 의해 분리한 뒤, 이를 초고속 카메라를 이용하여 매 30초마다 기록하였다.

증발하는 액적의 수직 진동에 의한 내부유동 관찰을 위해 초고속 카메라를 사용하여 가로(512pixel), 세로(512pixel)의 해상도와 초당 1,000~2000 프레임의 속도로 액적의 움직임을 관찰하였으며, 함수 발생기에 발생하는 주파수의 범위는 이론적 공진주파수 최대값(=822.27Hz) 이하인 75Hz에서 810Hz 이내에서 액적의 n 차 공진 주파수를 인가하였다. 또한, 일정한 실험 환경 조건을 위하여 실험 주위 온도를 25 \pm 1, 습도는 45% \pm 5%로 유지하면서 보다 정확한 실험이 진행될 수 있도록 하였다.

3.2 실험방법

본 연구에서는 가열된 표면에서 액적이 증발하는 동안 네 가지 공진모드(즉, 2, 4, 6, 8)에 따른 액적 내부 유동패턴, 내부 속도 그리고 증발 후 침전물의 패턴을 파악하여 공진에서의 액적이 증발에 미치는 영향에 대하여 분석하고자 다음과 같은 실험 과정을 수행하였다.

- (1) 실리콘 웨이퍼 표면과 초고속 카메라를 동일 선상에 두어 초점을 맞춘다.
- (2) 수평이 맞춰진 실리콘 웨이퍼 표면 위에 마이크로 피펫을 사용하여 실리콘 웨이퍼 판 위에 형광입자가 포함된 액적 5 μ l을 생성시킨다.
- (3) 실리콘 웨이퍼의 온도를 40°C가 되도록 열기관을 설정해준다.
- (4) 2차 공진 주파수로 수직 진동을 걸어준다.
- (5) Laser sheet를 액적 정중앙에 배치한 뒤 초

고속 카메라를 이용하여 1000~2000 프레임의 속도로 연속 촬영한다. 같은 방법으로, 4차, 6차 그리고 8차 공진 주파수의 내부 유동을 관찰한다.

(6) Scale bar를 이용하여 한 픽셀 당 거리를 calibration 한다.

(7) 획득한 이미지는 왜곡이 존재하므로 여러 가지 정밀계산 사용프로그램들(MATLAB, Mathematica 등)을 이용하여 렌즈효과가 보정된 이미지를 가지고 액적 내 유동변화를 분석한다.

4. 결과 및 고찰

4.1 액적내부의 온도분포 및 구배

Fig. 4는 반구형상의 액적이 가열된 고체표면에 놓였을 때의 내부 온도분포를 나타내고 있으며, 액적내부 등온선을 보면, 바닥면에서부터 액적의 상단으로 올라갈수록 온도가 낮아지는 것을 확인할 수 있으며, 이는 온도구배가 형성되는 원인으로 볼 수 있다. Fig. 5는 온도분포에 따른 온도구

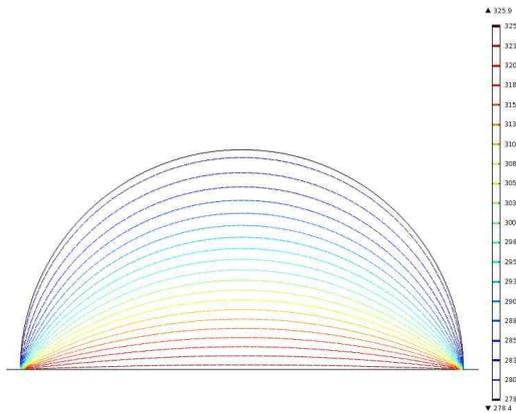


Fig. 4 Sectional view of temperature isothermal of an evaporating water droplet

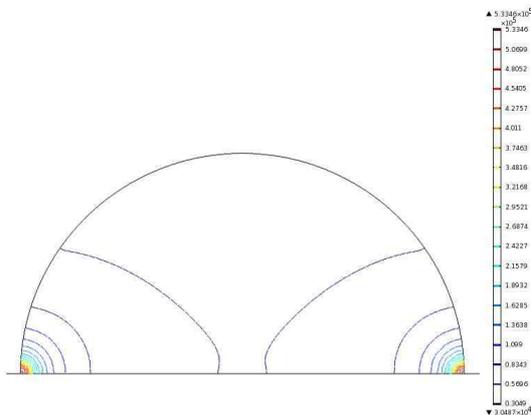


Fig. 5 Sectional view of temperature gradient of an evaporating water droplet

배를 계산한 결과이며, 온도구배는 상단과 하단의 온도 차이로 인해 발생하게 되는데, 이는 액적의 세로축으로 형성되고, 등온선과 마찬가지로 접촉선 부근에서 가장 조밀하게 분포되어있다. 특히, 액체의 자유표면에서 표면적을 최소화시키기 위해 작용하는 표면장력으로 인해 액적 표면에서의 분자들이 액체 내부에서의 분자들보다 분자사이의 인력에너지가 크게 작용하게 된다. 따라서 액체는 표면에 비해하는 표면에너지를 가지게 되고, 이로 인해 표면장력 구배가 유발된다.

4.2 증발하는 액적의 부피 및 접촉각 변화

일반적으로 액적의 증발은 접촉각의 변화에 따라 3가지의 단계로 나누어진다.⁽¹⁹⁾ 액적의 접촉선이 고정된 상태에서 접촉각만 감소하는 단계를 1단계, 액적의 접촉선이 움직이면서 접촉각이 아주 천천히 감소하는 단계를 2단계, 접촉선과 접촉각 모두 동시에 변화하면서 증발이 완전히 이루어지는 단계를 3단계로 구분한다.

본 실험에서는 액적이 소수성 표면에 놓였을 때의 높이 h 와 표면길이 a 를 이용하여 다음과 같은 수식을 통해서 접촉각과 부피변화를 측정 및 계산하였다.⁽¹⁹⁾

$$\theta = 2\arctan^{-1}(h/a) \tag{11}$$

$$v = \frac{1}{6}\pi h(3a^2 + h^2) \tag{12}$$

Fig. 6은 자연증발과 가열증발에서 증발에 따른 액적의 부피변화를 측정한 것이며, Fig. 7은 접촉각변화를 측정한 것이다. 자연증발 상태에서는 5

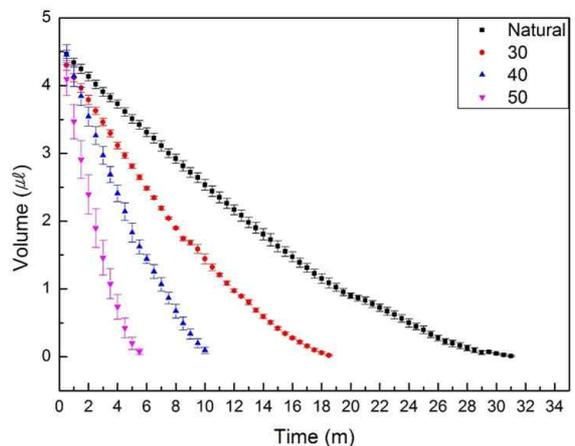


Fig. 6 Temporal volume variation in an evaporating water droplet.

μl 의 액적이 완전히 증발되는데 걸린 시간은 약 32분정도이며, 평판의 온도를 30, 40, 50°C로 가열 해주었을 때는 각각 약 19분, 11분, 6분이다. 증발에 따른 접촉각 변화의 경우에는 자연증발에서는 3가지의 단계가 명확하게 구분되었지만, 가열증발의 경우 마지막 3번째 단계가 명확하게 구분되지 않았다. 이는 증발이 진행될수록 액적의 부피가 작아짐에 따라 증발이 빨리 이루어져서 마지막 단계의 접촉각 변화가 보이지 않은 것으로 판단된다.

4.3 액적 내부유동 변화 및 제어

본 연구는 증발하는 액적의 정중앙에 레이저 시트(laser sheet)를 생성시킨 후 유동가시화를 통해 가열된 소수성 표면에 놓인 액적 내부의 유동 패턴을 확인하였다.

Fig. 8은 증발하는 액적의 내부 유동을 시간변

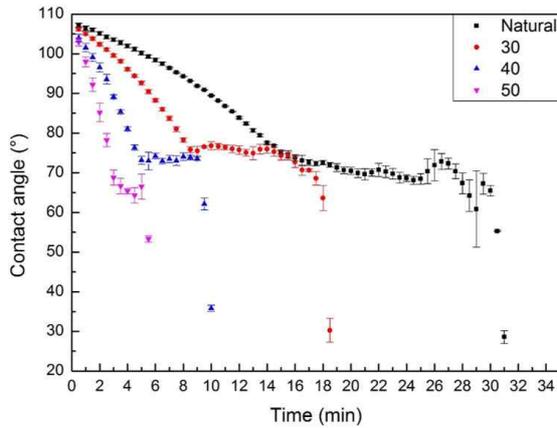


Fig. 7 Temporal variation of contact angle in an evaporating water droplet

화에 따라서 기록한 것이다. 이 내부 유동은 액적의 왼편에서는 시계방향, 오른편에서는 시계반대방향의 두개의 와류의 형태로 존재하며, 증발의 시작과 동시에 관찰되었다. 증발의 시작과 동시에 관찰된 내부유동은 특정시간이 지난 뒤 사라지게 되는 것을 관찰하였는데, 30°C 평판에서는 약 12분, 40°C 평판에서는 약 8분후 유동이 사라졌다. 이는 전체 증발시간에 70%에 해당하는 시간이며, 이는 증발하는 액적의 부피가 작아짐에 따라서 액적내의 온도구배가 점차 작아지며 표면장력 구배 또한 작아지게 되며 유동이 소멸하는 것으로 판단된다.

Fig. 9는 평판의 온도를 30~60°C까지 5°C마다 증가하였을 때 마랑고니 유동의 속도 값을 타나낸 것이다. 액적의 외곽영역의 왜곡을 잡아주기 위하여 MATLAB 코드를 사용하여 렌즈효과를 제거하였고, 액적의 중심역역의 속도 값을 평균하였다. 각 평판온도별 평균속도 값은 Table 1과

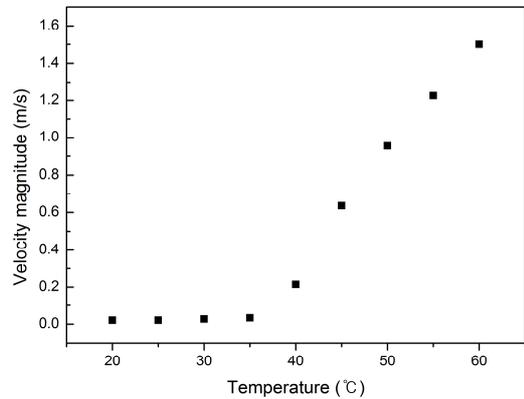


Fig. 9 Variation of internal flow speed against plate temperature

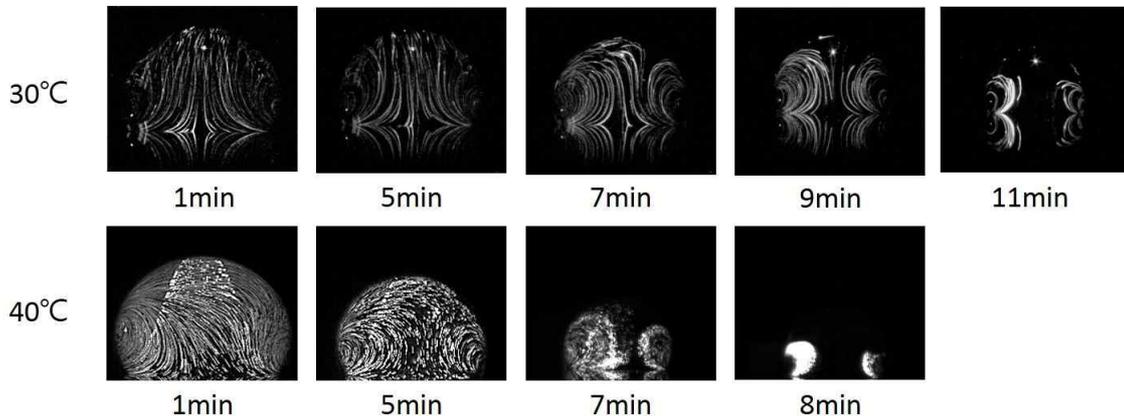


Fig. 8 Internal flow pattern of an evaporating droplet

Table 1 Variation of internal flow speed against plate temperature.

표면온도(°C)	20	25	30	35	40	45	50	55	60
유동 속도(mm/s)	0.019	0.020	0.026	0.032	0.214	0.636	0.954	1.225	1.501

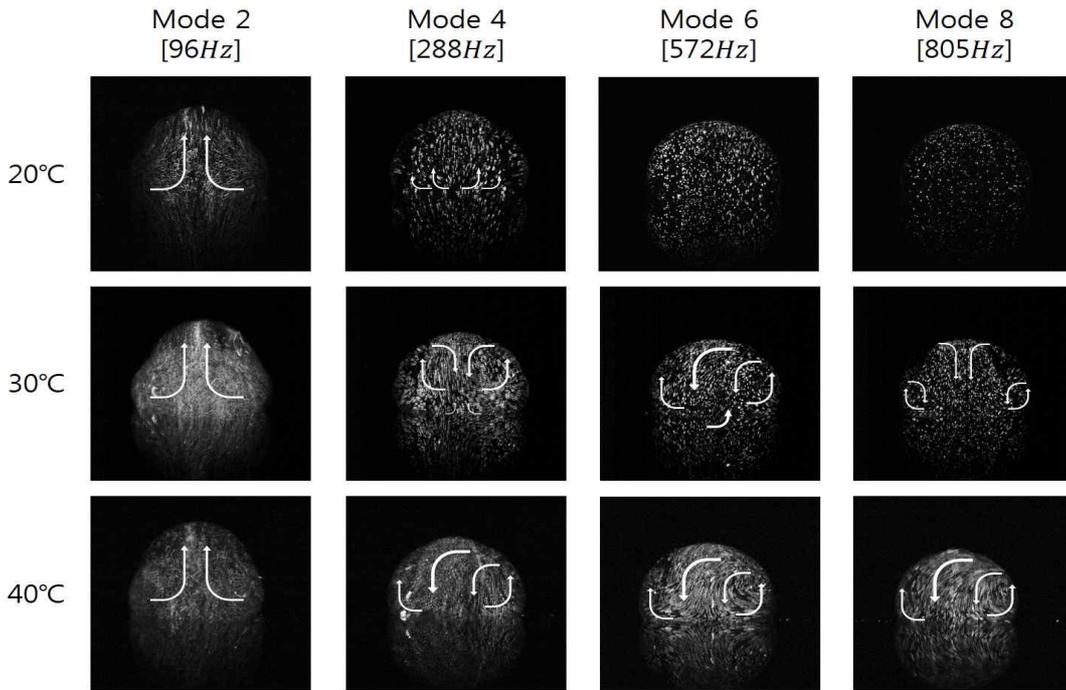


Fig. 10. Vibration-induced internal flow of an evaporating droplet.

같다. 30°C 평판에서는 주변공기온도(25°C)와 온도 차이가 크게 나지 않아 속도가 상대적으로 느리고, 40°C 평판에서부터 내부유동 속도는 크게 증가하는 것을 확인하였다.

Fig. 10은 초고속카메라로 촬영한 이미지를 각 10장씩 겹쳐서 입자의 움직임을 유선으로 나타낸 것이다. 이를 보면 20°C, 30°C, 40°C의 가열된 표면에서 Mode 2의 공진주파수로 진동하였을 경우 가장 큰 로브변화를 보였으며, 내부유동은 액적의 바닥면에서 상단으로 상승하는 유동이 관찰되었다. 그리고 Mode 4에서는 20°C에서 바닥면에서 상단으로 상승하는 유동만 관찰되었으나, 30°C에서는 바닥면에서 상승하는 유동과 마랑고니 유동이 동시에 관찰되었으며, 40°C에서는 비대칭적인 마랑고니 유동이 관찰되었다. Modes 6와 8로 진동을 가해주었을 때, 표면온도 20°C에서는 내부 유동이 거의 없고, 입자들이 멈춰있는 것으로 관찰되었으나, 30°C 및 40°C에서는 마랑고니 유동이 지속적으로 관찰되었다. 이러한 현상을 보면 상대적으로 저온인 20°C에서는 내부유동이 제어

가 가능하지만, 표면온도가 높을 경우 마랑고니 유동이 지속적으로 나타난다. 그리고 40°C의 표면온도에서 내부 유동이 비대칭적으로 관찰되었는데 이는 진동에 의한 내부 유동 때문에 마랑고니 유동이 대칭적으로 존재하지 못하고 유동방향이 변화된 것으로 판단된다. 이는 표면온도가 증가함에 따라 대칭적인 유동이 비대칭적으로 변하던 결과와는 달리 외부의 힘에 의해서 유동방향이 변화가 생긴 것으로 판단된다. 이러한 부분은 스피커의 작동전압을 증가시켜 주변 제어가 가능할 것으로 판단되지만, 진폭이 커질 경우 Mode 2와 같이 로브변화가 커지게 되고, 이는 내부 유동 관찰이 어려워 질것으로 판단된다.

4.4 액적의 증발에 따른 침전물 패턴

Fig. 11은 20°C, 30°C, 40°C의 가열된 표면에서 증발하는 액적에 각 모드별 공진주파수로 수직진동을 가해주었을 때, 증발 후 침전물의 패턴형을 촬영한 것이다. 이때 소수성 표면처리된 슬라이드 글라스를 사용하였고, 5μl 탈 이온수에

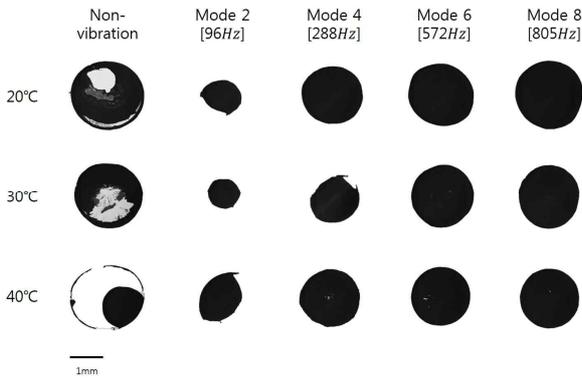


Fig. 11 Sediment stain pattern with temperature against mode

30%의 농도로 형광입자를 섞어주었다. 진동을 전혀 가해주지 않았을 때 침전물의 패턴을 보면 균일하지 못하게 패턴내부에 빈공간이 발생 한 것을 확인할 수 있고, 온도가 증가했을 경우, 40°C에서는 20, 30°C보다 더 크게 빈공간이 발생하였다. 이는 표면온도에 따라 액적의 증발속도가 빨라짐에 따라서 내부 침전물의 패턴도 달라지는 것으로 판단된다. Mode 2로 진동을 가해 주었을 때는 완벽한 구(circle)형태를 유지하지는 못하였지만 Mode 주파수가 증가할수록 패턴의 형상이 원형을 유지하는 것을 관찰하였다. 이는 Mode 2에서 가장 큰 로브(lobe) 변화폭은 가지고 있기 때문에 발생하는 것으로 판단된다. 로브의 변화폭이 클수록 액적의 접촉선의 움직임이 커지는데, Mode 주파수가 증가할수록 로브의 변화폭도 작아지며 침전물의 패턴도 구 형태를 유지하는 것을 볼 수 있다. 진동을 가해주지 않았을 경우와 비교해 보면, 침전물 패턴 내부에 빈공간이 발생하지 않고, 구 형태의 패턴을 유지하였으며, 외곽 부분은 제외한 영역에서 비교적 균일하게 분포됨을 확인할 수 있다.

5. 결론

본 연구에서는 초고속카메라를 통해 가열된 소수성 표면에 놓인 증발하는 액적의 접촉각 변화 및 부피변화, 내부유동 특성 등을 분석하였고, 액적의 공진 주파수로 수직 진동을 가했을 때 액적 내부유동을 가시화하였다. 액적이 증발할 때 접촉각의 변화에 따라서 3가지 단계로 구별되며, 첫 번째 단계로 접촉선이 고정되면서 접촉각이 감소되는 단계, 두 번째로는 접촉선이 감소되면

서 접촉각이 고정되는 단계, 그리고 마지막으로 세 번째로 접촉선 및 접촉각이 모두 감소하는 단계로 이루어져 있음을 실험적으로 확인하였다. 증발하는 액적 내부유동은 액적의 중심을 기준으로 대칭적인 와류의 형태로 존재하며, 왼쪽에서는 시계방향, 오른쪽에서는 시계반대방향으로 유동이 존재한다. 그리고 이 유동은 평판의 온도가 증가할수록 증발하는 액적의 유동속도 또한 증가하며, 주변 공기온도와 차이가 많이 날수록 빨라진다. 증발하는 액적 내부유동은 증발의 시작과 동시에 관찰 되었으며, 30°C 온도의 평판에서 약 12분, 40°C 온도의 평판에서 약 8분간 지속되다가 유동이 사라지는 것을 관찰하였다. 이는 총 증발 시간의 70% 이내에서만 존재하는 것을 확인하였다. 수직 진동에 의한 증발하는 액적의 내부유동은 20°C의 평판온도에서는 마랑고니 유동이 억제되였지만, 30°C 및 40°C의 온도조건에서는 마랑고니 유동이 관찰되었었다. 액적이 증발한 뒤 슬라이드 글라스에 남겨진 침전물의 패턴을 보면, 진동을 가해주지 않았을 경우 침전물 패턴내부에 빈공간이 생성된 것을 확인할 수 있었으며, Modes 2, 4, 6, 8의 공진주파수를 이용해서 진동을 가해주었을 경우 균일하게 침전물이 분포되었음을 확인할 수 있었다. 하지만 레이저 시트를 투과시켜 침전물 패턴을 관찰해본 결과 패턴테두리에 링모양의 두꺼운 층을 발견하였는데, 이는 액적의 증발초기 마랑고니 유동이 진동에 의한 유동보다 더 빠르기 때문인 것으로 판단된다. 따라서 본 연구결과 증발하는 액적 내부의 마랑고니 유동은 수직진동에 의해 변화가 발생하고, 이로 인해 침전물 패턴 형성이 균일하게 형성하는 것이 가능함을 확인하였다.

후 기

2016년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (No.20164030201230) 이 논문은 또한 2016년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2016R1A2B1013820).

참고문헌 (References)

- (1) Scriven, L. E. and Sterling, C. V., 1960, "The

- Marangoni Effects,” *Nature*, pp. 186~188.
- (2) Xu, X. and Luo, J., 2007, “Marangoni Flow in an Evaporating Water Droplet,” *Applied Physics Letters*, Vol. 91, No. 12, 124102.
- (3) Hu, H. and Larson, R. G., 2005, “Analysis of the Effects of Marangoni Stresses on the Microflow in an Evaporating Sessile Droplet,” *Langmuir*, Vol. 21, No. 9, pp. 3972~3980.
- (4) Hu, H. and Larson, R. G., 2006, “Marangoni Effect Reverses Coffee-ring Depositions,” *The Journal of Physical Chemistry B*, Vol. 110, No. 14, pp. 7090~7094.
- (5) Girard, F., Antoni, M., Faure, S. and Steinchen, A., 2006, “Evaporation and Marangoni Driven Convection in Small Heated Water Droplets,” *Langmuir*, Vol. 22, No. 26, pp. 11085~11091.
- (6) Wang, H., Wang, Z., Huang, L., Mitra, A. and Yan, Y., 2001, “Surface Patterned Porous Films by Convection-assisted Dynamic Self-assembly of Zeolite Nanoparticles,” *Langmuir*, Vol. 17, No. 9, pp. 2572~2574.
- (7) Truskett, V. N. and Stebe, K. J., 2003, “Influence of Surfactants on an Evaporating Drop: Fluorescence Images and Particle Deposition Patterns,” *Langmuir*, Vol. 19, No. 20, pp. 8271~8279.
- (8) Ou Ramdane, O. and Quéré, D., 1997, “Thickening Factor in Marangoni Coating,” *Langmuir*, No. 13, No. 11, pp. 2911~2916.
- (9) Singh, R. S., Grimes, C. A. and Dickey, E. C., 2002, “Fabrication of Nanoporous TiO₂ Films Through Benard-Marangoni Convection,” *Material Research Innovations*, 5(3-4), pp. 178~184.
- (10) Schwabe, D., 1981, “Marangoni Effects in Crystal Growth Melts,” *PCH PHYS. CHEM. HYDRODYN.*, 2(4), pp. 263~280.
- (11) Sirringhaus, H., Kawase, T., Friend, R. H., Shimoda, T., Inbasekaran, M., Wu, W. and Woo, E. P., 2000, “High-resolution Inkjet Printing of All-polymer Transistor Circuits,” *Science*, 290 (5499), pp. 2123~2126.
- (12) Dugas, V., Broutin, J. and Souteyrand, E., 2005, “Droplet Evaporation Study Applied to DNA Chip Manufacturing,” *Langmuir*, 21(20), pp. 9130~9136.
- (13) Yun, S., Kang, K. H., Lim, G., Kim, T. and Lim, H., 2013, “Surfactant-Induced Suppression of the Thermo Capillary Flow in Evaporating Water Droplets,” *Trans. of the Korean Soc. of Mech. Eng B*, Vol. 37, No. 7, pp. 695~701.
- (14) Mampallil, D., Reboud, J., Wilson, R., Wylie, D., Klug, D. R. and Cooper, J. M., 2015, “Acoustic Suppression of the Coffee-ring Effect,” *Soft matter*, Vol. 11, No. 36, pp. 7207~7213.
- (15) Kim, H. and Lim, H. C., 2015, “Mode Pattern of Internal Flow in a Water Droplet on a Vibrating Hydrophobic Surface,” *The Journal of Physical Chemistry B*, Vol. 119, No. 22, pp. 6740~6746.
- (16) Frank, P. I. and David, P. D., 1996, *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*. School of Mechanical Engineering, 4, p. 306.
- (17) Girard, F., Antoni, M., Faure, S. and Steinchen, A., 2008, “Influence of Heating Temperature and Relative Humidity in the Evaporation of Pinned Droplets,” *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, Vol. 323, No. 1, pp. 36~49.
- (18) Oh, J. M., Ko, S. H. and Kang, K. H., 2008, “Shape Oscillation of a Drop in ac Electrowetting,” *Langmuir*, Vol. 24, No. 15, pp. 8379~8386.
- (19) Mack, G. L., 1936, “The Determination of Contact Angles from Measurements of the Dimensions of Small Bubbles and Drops. I. The Spheroidal Segment Method for Acute Angles,” *The Journal of Physical Chemistry*, Vol. 40, No. 2, pp. 159~167.
- (20) Kang, K. H., Lee, S. J., Lee, C. M. and Kang, I. S., 2004, “Quantitative Visualization of Flow Inside an Evaporating Droplet using the Ray Tracing Method,” *Measurement Science and Technology*, Vol. 15, No. 6, p. 1104.
- (21) Tam, D., von ARNIM, V. O. L. K. M. A. R., McKinley, G. H. and Hosoi, A. E., 2009, “Marangoni Convection in Droplets on Superhydrophobic Surfaces,” *Journal of Fluid Mechanics*, 624, pp. 101~123.
- (22) Marmottant, P. and Hilgenfeldt, S., 2003, “Controlled Vesicle Deformation and Lysis by Single Oscillating Bubbles,” *Nature*, Vol. 423, No. 6936, pp. 153~156.
- (23) McHale, G., Elliott, S. J., Newton, M. I., Herbertson, D. L. and Esmer, K., 2008, “Levitation-free Vibrated Droplets: Resonant Oscillations of Liquid Marbles,” *Langmuir*, Vol. 25, No. 1, pp. 529~533.
- (24) Matsumoto, T., Fujii, H., Ueda, T., Kamai, M. and Nogi, K., 2005, “Measurement of Surface Tension of Molten Copper using the Free-fall Oscillating Drop Metho,” *Measurement Science and Technology*, Vol. 16, No. 2, p. 432.
- (25) Young, T., 1805, “An Essay on the Cohesion of Fluids,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 95, pp. 65~87.

- (26) Oh, J. M., Legendre, D. and Mugele, F., 2012, "Shaken Not Stirred-On Internal Flow Patterns in Oscillating Sessile Drops," *EPL (Europhysics Letters)*, Vol. 98, No. 3, 34003.
- (27) Brunet, P., Eggers, J. and Deegan, R. D., 2007, "Vibration-induced Climbing of Drops," *Physical Review Letters*, Vol. 99, No. 14, 144501.