

에어로솔 반응기에서 클러스터의 확산과 열영동

이중호(학), 박승빈(정)
한국과학기술원 화학공학과

Diffusion and Thermophoresis of Clusters in an Aerosol Reactor

Jong Ho Lee, Seung Bin Park

Department of Chemical Engineering

Korea Advanced Institute of Science and Technology

서론

연속적인 반응에 의해 클러스터 입자가 생기고 수 백 내지 수 천 기본 입자의 크기로 자라나는 현상과 클러스터 입자가 확산과 열영동에 의해 벽에 증착되는 현상은 광섬유 제조 공정과 반도체, 요업 재료 공정에 관여하는 중요한 현상들이다. 따라서, 이 중요한 두 현상을 포함하는, 에어로솔 관형 반응기에 대한 수치모사를 수행하여, 확산과 열영동에 의한 기본 입자와 클러스터 입자들의 거동 및 반응기 벽으로의 침적이 입자 성장에 어떠한 영향을 미치는지 조사하였다.

문제의 단순화를 위하여, 기본 입자 간의 반응이나 클러스터 끼리의 반응은 없고, 주어진 클러스터 핵에 기본 입자가 반응하여 클러스터가 자라나는 pure birth process를 고려하였으며, 이 때 반응 속도 상수는 hard-sphere theory에 의해 계산하였다. 기본 입자나 클러스터의 이동 기구로는 강제 대류와 확산, 열영동을 고려하였다. 열영동이란, 에어로솔 입자가 온도 구배가 존재하는 유체에 떠 있을 때 온도가 높은 쪽에서 낮은 쪽으로 이동하는 현상을 말한다[1]. 이러한 열영동 현상은 입자 크기가 수 μm 내지 sub-micron일 때 주로 나타난다.

앞에서 기술한 반응기 계에 대해 에너지 수지식, 기본 입자와 클러스터의 물질 수지식, 클러스터 크기에 대한 지배식을 수치적으로 해석함으로써, 반응기 내에서의 온도 분포, 기본 입자와 클러스터의 농도 분포, 클러스터의 크기 변화 및 침적량을 계산하였다.

Modeling

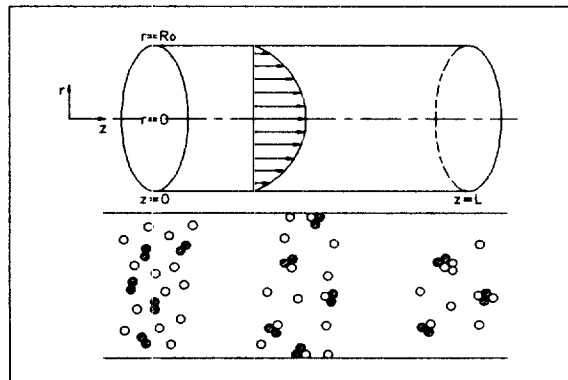


Fig. 1. Schematic diagram of the aerosol reactor.

Fig. 1과 같은 관형 에어로솔 반응기에서 속도 분포를 $u(r)=u_{\max}(1-(r/R_0)^2)$ 으로 가정하고 z -방향으로는 대류만을, r -방향으로는 확산 및 열영동만을 고려하면 온도, 기본 입자의 농도, 클러스터의 농도, 클러스터의 크기에 대한 지배식을 다음과 같이 얻을 수 있다.

$$u_{\max} \left(1 - \left(\frac{r}{R_0}\right)^2\right) \frac{\partial T}{\partial z} = \frac{\alpha}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) \quad (1)$$

$$u_{\max} \left(1 - \left(\frac{r}{R_0}\right)^2\right) \frac{\partial C_1}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r D_{m1} \frac{\partial C_1}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r C_1 K_{T,1} \frac{\nu}{T} \frac{\partial T}{\partial r} \right) - K(N_c) C_1 C_c \quad (2)$$

$$u_{\max} \left(1 - \left(\frac{r}{R_0}\right)^2\right) \frac{\partial C_c}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r D_{mc} \frac{\partial C_c}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r C_c K_{T,c} \frac{\nu}{T} \frac{\partial T}{\partial r} \right) \quad (3)$$

$$u_{\max} \left(1 - \left(\frac{r}{R_0}\right)^2\right) \frac{\partial N_c}{\partial z} = \frac{D_{mc}}{C_c} \frac{\partial C_c}{\partial r} \frac{\partial N_c}{\partial r} + K_{T,c} \frac{\nu}{T} \frac{\partial T}{\partial r} \frac{\partial N_c}{\partial r} + K(N_c) C_1 \quad (4)$$

$$\text{B.C.'s : } T = T_0, \quad C_1 = C_{1,0}, \quad C_c = C_{c,0}, \quad N_c = 2 \quad \text{at } z = 0 \quad (5)$$

$$T = T_w, \quad C_1 = C_c = 0, \quad \frac{\partial N_c}{\partial r} = 0 \quad \text{at } r = R_0 \quad (6)$$

$$\frac{\partial T}{\partial r} = \frac{\partial C_1}{\partial r} = \frac{\partial C_c}{\partial r} = 0 \quad \text{at } r = 0 \quad (7)$$

여기서, T 는 반응기 내의 온도, C_1 과 C_c 는 각각 기본 입자와 클러스터의 농도, N_c 는 어떤 위치에서의 클러스터의 평균 크기를 나타낸다. 반응기 입구의 클러스터 핵의 크기가 2라는 것은 기본 입자 2개로 이루어진 것임을 의미한다. 또한, $K_{T,1}$ 과 $K_{T,c}$ 는 각각 기본 입자와 클러스터에 대한 열영동 계수로서, 일반적으로 열영동 계수 K_T 는 입자의 크기에 따른 함수로서 다음과 같이 표현된다[2].

$$K_T = \frac{2.294(k/k_p + 2.2Kn)C_c}{(1 + 3.438Kn)(1 + 2k/k_p + 4.4Kn)} \quad (8)$$

여기서, C_c 는 Cunningham's correction factor로서 다음과 같이 표현된다[1].

$$C_c = 1 + Kn \left[1.252 + 0.399 \exp\left(-\frac{1.100}{Kn}\right) \right] \quad (9)$$

또한, 운반기체의 열확산계수와 에어로솔 입자들의 물질확산계수 및 Knudsen 수를 계산하기 위한 평균자유행로는 hard-sphere theory에 의해 계산하였다.

결과 및 토론

Fig. 2에 압력이 100 torr, 유량이 30 l/min, 반응기 입구의 온도가 1000 K, 반응기 벽면의 온도가 300 K일 때의 반응기 내의 온도 분포를 나타내었다. 반응기 입구 근처에서는 온도 기울기가 매우 크므로 열영동 효과가 크게 작용한다. 따라서, Fig. 3과 4에서의 기본입자와 클러스터의 농도가 반응기 입구에서 급격히 감소함을 보이게 된다. 이 때, 기본입자는 silver 원자 10000개가 모여서 이루어진 것으로 가정하였다. 반응에 의해 소모되지 않는 클러스터에 비해, 반응에 의해 소모되는 기본 입자의 농도가 훨씬 더 급격하게 감소한다. Fig. 5, 6, 7에는 벽면의 온도를 각각 300K, 600K, 1000K으로 변화시켜 가며 입자 크기 분포를 나타

내었다. 주입 온도와 반응기 벽면의 온도의 차가 작아지면 작아질수록 입자의 크기가 균일하고 작아짐을 알 수 있다. 이와 같은 이유는, 온도차가 작아질수록 열영동에 의한 입자 침적이 감소하므로 반응기 내의 입자 농도가 보다 균일해지기 때문이다. Fig. 8에는 압력을 760 torr로 증가시켰을 때의 입자크기 분포를 나타내었는데, 압력이 100 torr일 때보다 크기 분포가 더 균일해짐을 알 수 있다. 이는 압력이 높아지면 열영동 계수가 작아지므로 온도차를 작게 하였을 때와 마찬가지로 열영동에 의한 입자의 침적이 감소하기 때문이다. Fig. 9에는 온도차에 따른 입자의 침적량을 나타내었는데, 이로부터 이 크기의 입자는 열영동 효과가 큼을 알 수 있고, 벽면의 온도를 900K으로 유지할 때 침적량이 거의 없는 것으로 보아 확산의 효과는 열영동에 비해 작음을 알 수 있다. 이상의 결과로부터 미세하고 균일한 입자를 제조하기 위해서는 반응기내의 온도 구배를 최소화해야 함을 알 수 있다.

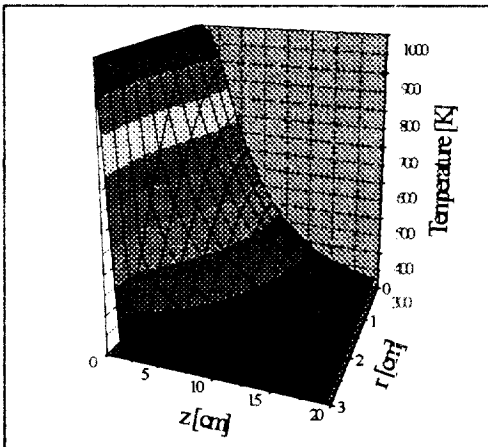


Fig. 2. Temperature Profile.

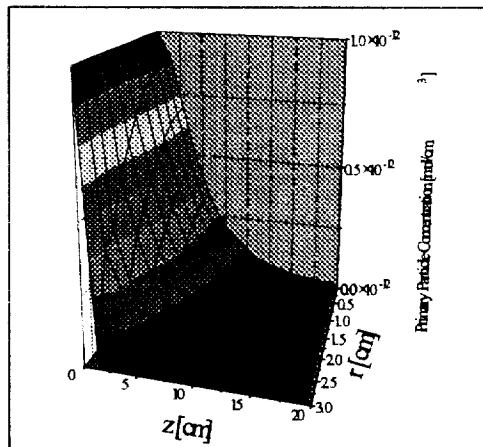


Fig.3. Primary Particle Concentration Profile.

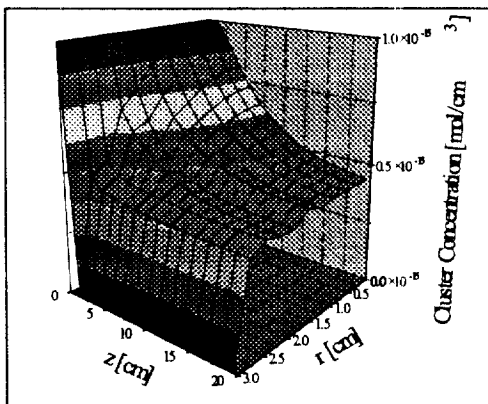


Fig. 4. Cluster Concentration Profile.

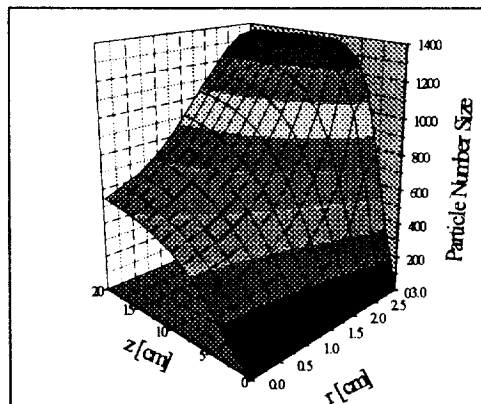


Fig. 5. Particle Size Distribution.
($P=100\text{torr}, T_w=300\text{K}, T_o=1000\text{K}$).

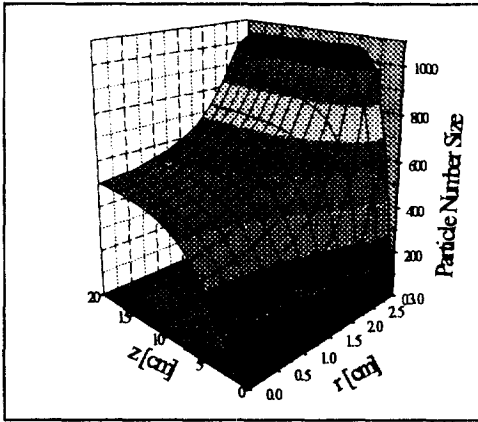


Fig. 6. Particle Size Distribution.
($P=100\text{torr}, T_w=600\text{K}, T_o=1000\text{K}$).

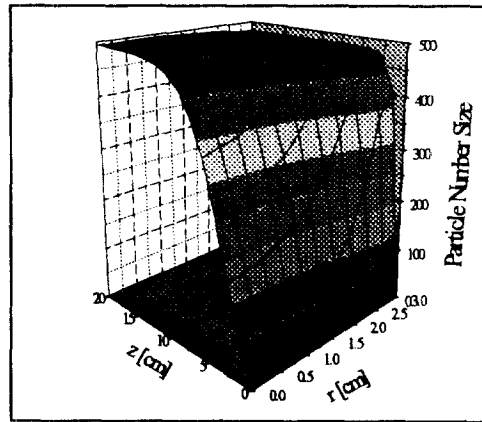


Fig. 7. Particle Size Distribution.
($P=100\text{torr}, T_w=1000\text{K}, T_o=1000\text{K}$).

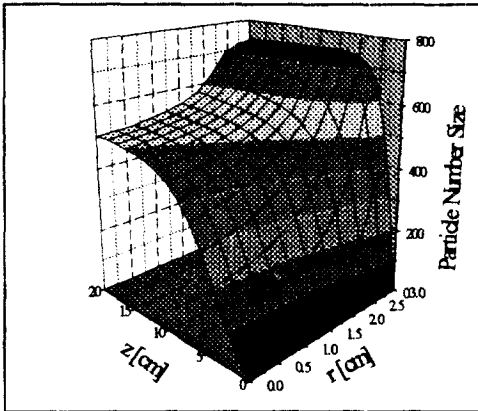


Fig. 8. Particle Size Distribution.
($P=760\text{torr}, T_w=300\text{K}, T_o=1000\text{K}$).

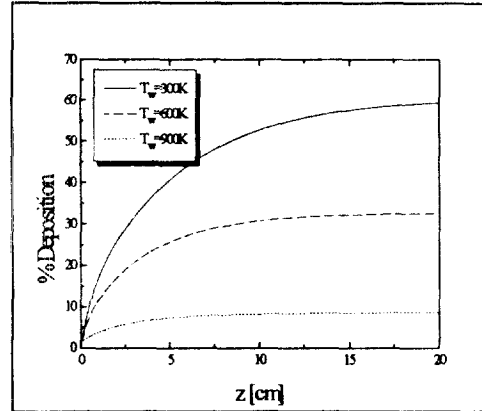


Fig. 9. Effect of Temperature Gradient
on the Particle Deposition.

참고문헌

1. P.C. Reist, *Aerosol Science and Technology*, McGraw-Hill, New York, p.163, 1993.
2. L. Talbot, R.K. Cheng, R.W. Schefer and D.R. Willis, "Thermophoresis of particles in a heated boundary layer", *J. Fluid Mech.*, vol.101, part 4, pp.737~758, 1980.