

튜브형 가열로 반응기를 이용한 초미립 SiO₂ 입자의 생성 및 증착 제어

현봉수, 김교선
강원대학교 공과대학 화학공학과

The Control of Ultrafine SiO₂ Particle Generation and Deposition by Using the Tube Furnace Reactor

Bong-Su Hyun, Kyo-Seon Kim
Department of Chemical Engineering, College of Engineering,
Kangweon National University

서론

첨단 multi-media 시대를 가능하게 만든 여러가지 요소들 중에 커다란 부분을 차지하는 것이 광섬유라 하겠다. 광섬유를 이용한 광통신은 외부 전기장에 의한 영향을 받지 않으며, 광섬유 자체의 안정성 및 유연성이 매우 높기 때문에 광통신에서는 혼선될 가능성이 거의 없고, 기존의 통신 수단에 비하여 전송에 따른 손실은 적으며 (<1dB/km), 넓은 범위의 주파수 (band-width, 1~100 GHz)에 적용할 수 있다는 장점을 지니고 있다 [1].

본 연구는 MCVD 를 이용한 광섬유 모재 제조공정을 연구하기 위해 MCVD 반응기의 모델화된 실험장치를 이용하여 SiO₂ 입자의 생성 및 성장, 증착과정을 고찰하였다. 또한 이론적인 모델 연구로써 반응기 내에서의 SiCl₄ 산화반응에 의한 SiO₂ 입자 생성, 충돌에 의한 입자 성장, 열영동에 의한 증착, 입자의 확산 등의 현상을 고려하여 반응물의 전환률과 증착효율을 계산하였다. 공정변수로 반응기 온도, 반응물 농도, 기체유량 등을 변화시키며 튜브형 가열로 반응기에서 생성되는 SiO₂ 미립자 분말의 특성 (크기,농도) 및 증착 (증착량, 증착효율)에 관하여 이론적으로 계산하였으며, 이용된 모델식에서는 반응기내의 열전달식, 반응물 수지식, SiO₂ 입자의 0차 1차 2차 모멘트에 대한 수지식 등을 포함하였다. 에어로졸 입도 분포에 대한 가정으로는 실험적으로 많이 입증된 log-normal의 분포식을 사용하였다. 또한 실험에 의한 측정 결과와 모델식에 의해 예측된 입자 특성 결과 및 증착효율 결과를 비교하도록 하였다.

이론

본 모델화된 MCVD 반응기의 모델식을 세우기 위해 다음의 식 (1)~(5)로 나타내지는 튜브형 가열로 반응기에서의 열전달식, SiCl₄ 물질수지식, SiO₂ 입자의

0차, 1차, 2차 모멘트 수지식을 이용하여 풀었다 [2~7].

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

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

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

$$u \frac{\partial M_1}{\partial z} = \frac{B_1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \frac{\partial}{\partial r} (M_{2/3} + B_2 M_{1/3}) \right] + \frac{K\nu}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(M_1 r \frac{\partial \ln T}{\partial r} \right) + \text{RXN} N_{av} v^* \quad (4)$$

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

식 (1)~(5)를 풀기 위한 초기조건 및 경계조건을 나타내면 다음과 같다.

$$T = T_i, C = C_i, M_0 = M_1 = M_2 = 0 \quad \text{at } z=0$$

$$\frac{\partial T}{\partial r} = \frac{\partial C}{\partial r} = \frac{\partial M_0}{\partial r} = \frac{\partial M_1}{\partial r} = \frac{\partial M_2}{\partial r} \quad \text{at } r=0$$

$$\frac{\partial C}{\partial r} = 0, M_0 = M_1 = M_2 = 0 \quad \text{at } r = R$$

본 실험장치에서 반응구간의 반응기 벽온도는 실험에 의해 다음식으로 표시되었다 (설정온도(T_w) = 1300°C일 경우).

$$T = -2.1391z^2 + 78.741z + 650.323 \quad \text{at } z \leq 20, r=R$$

$$T = T_w \quad \text{at } 20 < z \leq 40, r=R$$

$$T = -1.8931z^2 + 156.1034z - 2381.4094 \quad \text{at } 40 < z \leq 62, r=R$$

본 실험장치에서 증착구간의 반응기 벽온도는 반응기 길이에 따라 온도 제어가 가능하도록 제작하여 초미립 SiO₂ 입자의 증착 제어가 가능하도록 하였다.

결과 및 토론

수치 모사 및 실험에 이용된 반응 및 증착구간은 전체길이 122cm 중에서 반응기 길이방향으로 $z \leq 62$ 일 때를 반응구간, $62 < z \leq 122$ 일 때를 증착구간으로 하였다. 반응구간은 Furnace 튜브에 의해 고온으로 가열되어 SiCl_4 의 산화반응이 일어나는 구간이며, 증착구간은 반응구간 뒤쪽에 연결되어 있다. 증착구간은 Pyrex 튜브로 되어 있으며 튜브 벽의 온도를 제어함으로써 원하는 증착구배를 얻을 수 있도록 설계되었다.

제시된 모델식을 풀기 위한 수치모사의 표준 조건으로 SiCl_4 초기농도 0.5 mol %, 가열로 온도 1300 °C, 전체기체 유량 4 l/min (STP 조건)으로 하였다. 모델식의 수치모사와 실험결과를 비교하기 위해 실험장치 중의 반응구간 튜브 벽온도를 측정하였다. Fig.1 은 반응구간에서의 설정 온도를 1100, 1200, 1300, 1400 °C 조절하였을 때의 반응기 길이에 따른 반응기 벽온도의 측정값 및 curve fitting 결과를 보여주고있다. $0 \leq z \leq 20$ 일 때 튜브벽 온도는 2차 함수 형태로 증가하였고, $20 < z \leq 40$ 구간의 튜브벽 온도는 가열로의 설정온도와 일치하며, $40 < z \leq 62$ 에서는 2차 함수 형태로 튜브벽 온도가 감소함을 알 수 있었다.

Fig.2 는 튜브 길이에 따른 SiCl_4 전환률과 증착률을 표준 조건하에서 수치모사 한 결과를 보여주고 있다. SiCl_4 전환률은 $25 \leq z \leq 50$ 구간에서 급격히 증가하고 있으며 최종전환률은 96% 이었고 $z \geq 50$ 구간에서는 반응이 종결되고 있다. 또한 SiCl_4 의 산화반응으로 생성된 SiO_2 입자가 기체흐름이 튜브벽에 의해 냉각되는 구간에서 thermophoresis 에 의해 튜브벽으로 증착되고 있음을 보이고 있다. 반응구간인 $z=40$ 부근에서부터 반응구간 내의 온도구배에 의해 SiO_2 입자의 증착이 시작되고 있으며, 계산결과에 의한 최종 증착효율은 공급된 SiCl_4 농도에 대하여 약 67% 이었다.

반응기내 온도분포, SiCl_4 농도분포, SiO_2 입자의 무차원 부피, 입자의 농도 및 크기분포 등을 분석할 예정이며, 증착구간의 온도를 제어함으로써 열영동에 의한 증착 특성에 관해 연구하고자 한다. 또한 공정제어 변수 (가열로 온도, SiCl_4 초기농도, 전체기체유량 등)을 변화시키면서 생성된 SiO_2 입자의 특성과 증착 상태를 고찰할 예정이다. 실험에 의해 측정된 초미립 SiO_2 입자의 생성 및 증착 특성에 대한 결과와 수치모사 결과를 비교하도록 한다.

참고문헌

1. Kim, K. S.: *화학공업과 기술*, 11(5), 47(1993).
2. Kim, K. S. and Pratsinis, S. E.: *AIChE J.*, 34, 912(1988).
3. Akhtar, M. K., Xiong, Y. and Pratsinis, S. E.: *AIChE J.*, 37, 1561(1991).
4. Friedlander, S. K.: 'Smoke, Dust and Haze', Wiley, New York (1977).
5. Seinfeld, J. H.: 'Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution', Wiley, New York (1986).
6. Friedlander, S. K.: *Aerosol Sci. and Technol.*, 1, 3(1982).
7. Brock, J. R.: 'Simulation of Aerosol Dynamics in Theory of Disperse Multiflow', Mayer, R. E. ed., Academic Press, New York(1983).

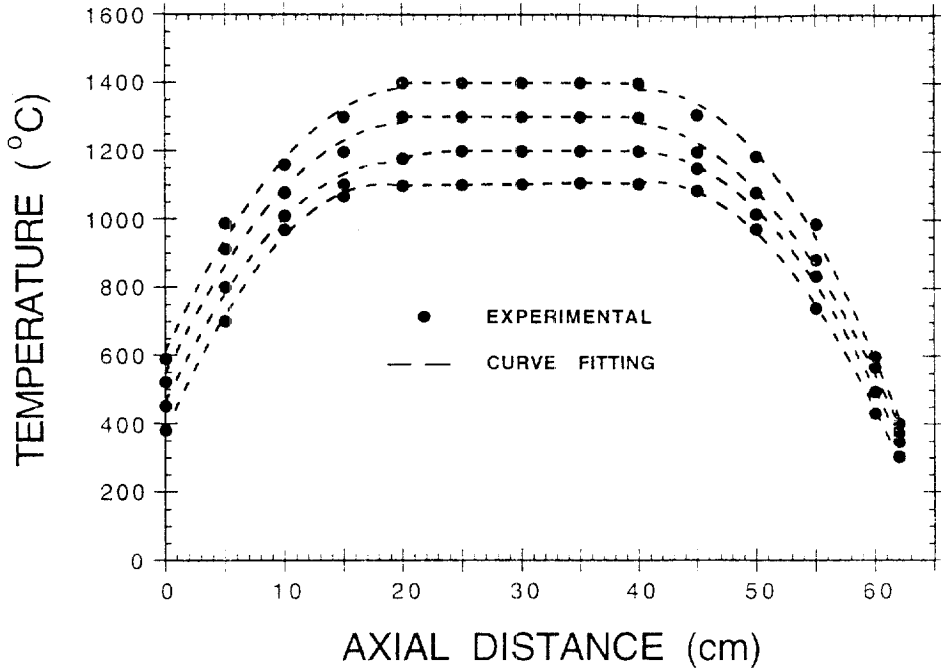


Fig.1 Tube wall temperature profile in reaction zone for various settings temperature

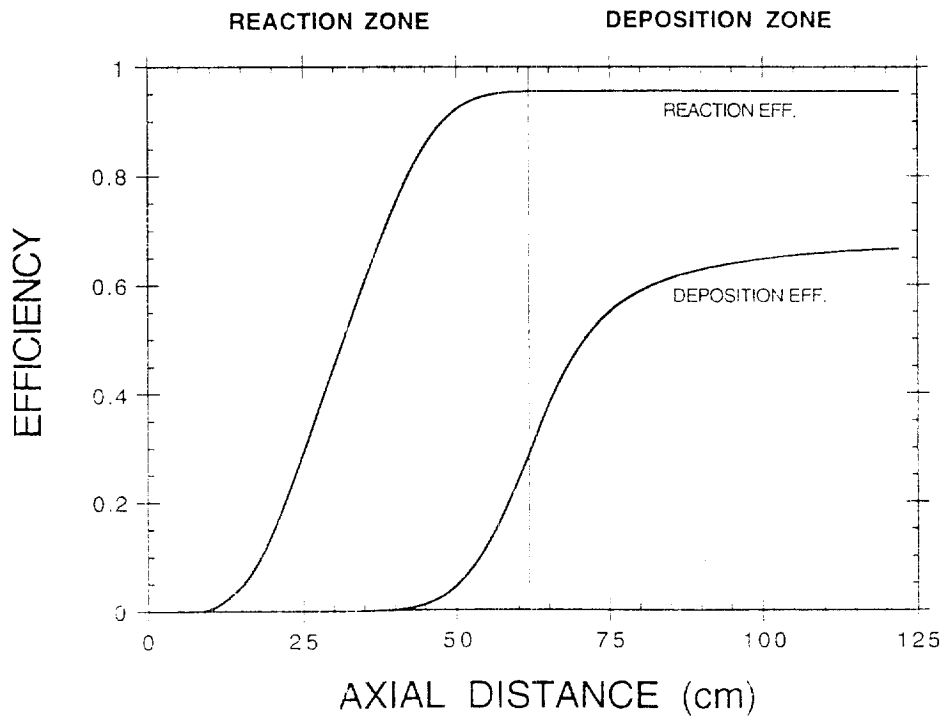


Fig.2 SiCl₄ conversion and deposition efficiencies as a function of axial distance.