

〈논 문〉

외부 화학증착 공정에서의 가수분해반응으로 인한 실리카 생성에 대한 버크-슈만 해석

송창걸* · 황정호**

(1995년 7월 28일 접수)

Burke-Schumann Analysis of Silica Formation by Hydrolysis in an External Chemical Vapor Deposition Process

Chang-Gull Song* and Jung-Ho Hwang**

Key Words : Optical Fiber(광섬유), Silica Formation(실리카 생성), Vapor Axial Deposition (VAD), Outside Vapor Deposition(OVD), Hydrolysis(가수분해), Burke-Schumann 해석, VAD 버너

Abstract

In external chemical vapor deposition processes including VAD and OVD the distribution of flame-synthesized silica particles is determined by heat and mass transfer limitations to particle formation. Combustion gas flow velocities are such that the particle diffusion time scale is longer than that of gas flow convection in the zone of particle formation. The consequence of these effects is that the particles formed tend to remain along straight smooth flow stream lines. Silica particles are formed due to oxidation and hydrolysis. In the hydrolysis, the particles are formed in diffuse bands and particle formation thus requires the diffusion of SiCl_4 toward CH_4/O_2 combustion zone to react with H_2O diffusing away from these same zones on the torch face. The conversion kinetics of hydrolysis is fast compared to diffusion and the rate of conversion is thus diffusion-limited. In the language of combustion, the hydrolysis occurs as a Burke-Schumann process. In selected conditions, reaction zone shape and temperature distributions predicted by the Burke-Schumann analysis are introduced and compared with experimental data available. The calculated centerline temperatures inside the reaction zone agree well with the data, but the calculated values outside the reaction zone are a little higher than the data since the analysis does not consider diffusion in the axial direction and mixing of the combustion products with ambient air. The temperatures along the radial direction agree with the data near the centerline, but gradually diverge from the data as the distance is away from the centerline. This is caused by the convection in the radial direction, which is not considered in the analysis. Spatial distribution of silica particles are affected by convection and diffusion, resulting in a Gaussian form in the radial direction.

*연세대학교 대학원 기계공학과

**회원, 연세대학교 기계공학과

- c_p : 정압비열
- D : 확산계수
- f : 연료 대 산화제의 질량 양론비
- F : 연료 (SiCl_4)
- h : 엔탈피
- ΔH : 단위질량당 연료 연소열
- J_0, J_1 : Bessel 함수
- k : 열전도계수
- k_n : Bessel 함수 $J_1(x)=0$ 의 양의 정수 근
- m''' : 단위부피 당 질량생성률
- O : 산화제 (H_2O)
- \dot{q}''' : 단위부피 당 열방출률
- P : 가수분해 반응생성물
- r : 반경방향 좌표
- T_g : H_2O 분사온도
- T_1 : $\text{SiCl}_4, \text{O}_2, \text{N}_2$ 분사온도
- v_r : 반경방향 유체속도
- v_z : 축방향 유체속도
- Y : 질량분율
- z : 축방향 좌표
- β : 무차원 종속변수
- ζ, η : 무차원 독립변수
- ρ : 밀도
- ϕ : CH_4 대 O_2 의 당량비

- 하첨자
- F : 연료
- i : 버너 출구조건 ($z=0$)
- O : 산화제
- P : 반응생성물

1. 서 론

기체 유동장내에 존재하는 높은 수밀도의 미세 입자 생성은 여러 산업 현장에서 많이 발견되며 특히 VAD(Vapor Axial Deposition), OVD(Outside Vapor Deposition)과 같은 광섬유를 생산하는 외부 화학증착 공정에서 이러한 현상이 응용되고 있다.⁽¹⁾ 광섬유를 인발해내기 전 단계의 재료인 모재(preform)는 투명한 봉 형태를 하고 있으며 광섬유 최종 제품의 단면 굴절률 분포와 동일한 단면 굴절률 분포를 가지므로 광섬유 생산에 있어서는 모재 제조가 매우 중요하다. 광섬유 모재의 제조시 요구되는 높은 순도를 만족시키기 위하여 채택된 방식이 바로 VAD, OVD 등과 같은 화염을 이용한 입자 생성 및 부착 방식이다. Fig. 1은 이와 같은 외부 화학증착 공정의 경우 사용되는 토치 중 하나를 보여주는데 이는 8개의 동심원관으로 이루어져 있으며 토치 중심원관으로부터 외부원관으로 SiCl_4

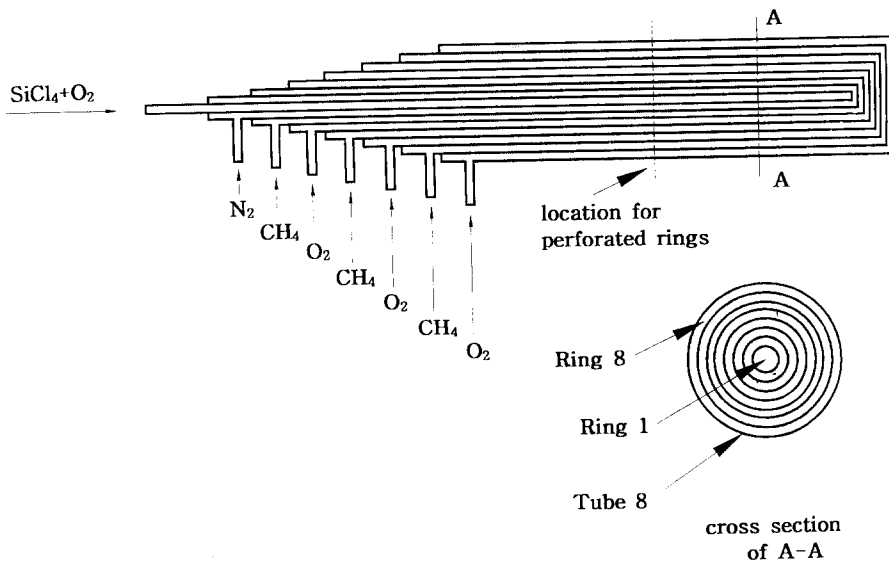
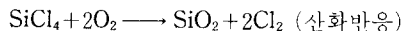
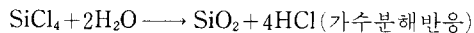


Fig. 1 Schematic diagram of a Burner

Table 1 Burner Specifications

Ring No.	ID(mm)	OD(mm)	Ring gap (mm)	Tube length (mm)	Gas delivered
1	3.34	4.76	3.34	228.6	SiCl ₄ +O ₂
2	6.53	7.94	0.89	203.6	N ₂
3	10.21	12.7	1.14	184.26	CH ₄
4	16.05	17.46	1.67	164.91	O ₂
5	20.45	22.23	1.6	145.57	CH ₄
6	24.38	25.4	1.08	126.22	O ₂
7	27.56	28.58	1.08	106.88	CH ₄
8	31.62	34.93	1.52	87.53	O ₂

와 O₂의 혼합기체, N₂, CH₄, O₂, CH₄, O₂, CH₄, O₂가 각각 주입된다. 토치원관들에 대한 자세한 사항은 Table 1에 나타나 있다. 광섬유 모재를 형성하는 주 입자인 SiO₂는 원료물질 SiCl₄가 CH₄/O₂ 연소 생성물인 H₂O와의 가수분해반응을 거쳐 만들어 지거나 1100°C 이상에서 운반기체 O₂와의 직접적인 산화반응으로 형성된다.⁽²⁾



두번째 원관에 주입되는 비반응 기체 N₂는 SiCl₄와 H₂O의 반응에 대한 일종의 차단 가스 역할을 하는데 그 이유는 너무 일찍 일어나는 가수분해 반응으로 인하여 생성된 SiO₂가 토치표면이 막히게 됨을 방지하기 위함이다.

Bautista 등⁽³⁾에 의하면 토치 중심선을 따라 관찰되는 실리카 입자들은 산화반응의 결과이고 토치 반경방향으로의 확산으로 인해 일종의 밴드 형태의 분포를 이루는 입자들은 가수분해반응의 결과이다. 산화반응 메커니즘의 경우 한 개의 전반적인 반응식으로 단순화되기도 하지만^(4,5) 아직 자세한 반응 메커니즘은 알려져 있지 않으며 가수분해반응의 경우는 정보가 전혀 없는 실정이다. Bautista 등⁽³⁾의 실험결과들을 바탕으로 가수분해반응을 연소측면에서 이해한다면 화학반응에 소요되는 시간이 확산시간보다 매우 빠른 확산 지배적 시간이라는 것이다. 따라서 본 연구에서는 가수분해로 인한 실리카 입자 생성을 고전적인 Burke-Schumann 해석⁽⁶⁾으로 진단하여 이때의 가수분해 반응면의 형상, 실리카 입자분포, 계의 온도분포를 구하고자 한다. 이를 위하여 먼저 실리카 입자 생성에 대한 Burke

-Schumann 모델을 소개한 뒤에 선정된 조건에서 계산을 수행하여 그 결과를 기존의 실험결과와 비교 및 토의하기로 한다.

2. Burke-Schumann 모델

실제의 외부 화학증착 공정에서의 SiCl₄ 분사유동은 대기로의 자유 제트(free jet) 유동이지만 본 연구에서는 토치 반경이 SiCl₄가 주입되는 중심원관 반경보다 약 10배 정도로 크다는 점에 착안하여 SiCl₄ 분사유동을 무한히 긴 원관의 중심에 위치한 작은 원관에서의 제한된 제트(confined jet) 유동으로 간주하였다. Fig. 2는 이와 같이 단순화된 VAD 토치의 기하학적 형상과 해석에 사용되는 좌표계 등을 보여준다. 이를 바탕으로 본 연구에서 사용한 Burke-Schumann 가정들을 소개하면 다음과 같다

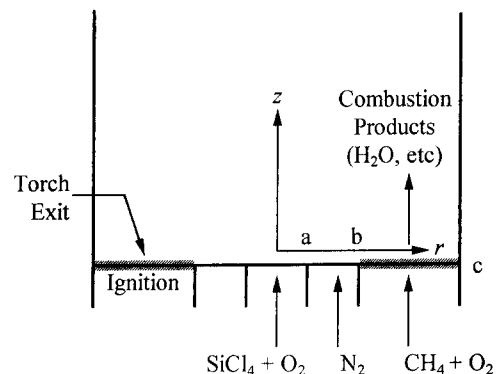


Fig. 2 System configuration for Burke Schumann model

- ① SiCl_4 와 O_2 의 혼합가스는 온도 T_1 로 토치위치 $0 < r < a$ 에서 분사된다.
- ② 토치 반경 $a < r < b$ 에서는 비반응기체인 N_2 가 온도 T_1 로 분사된다.
- ③ CH_4/O_2 화염은 당량비(equivalence ratio) ϕ 로 예혼합되어 토치 반경 $b < r < c$ 에서 분출되며 이때 토치 표면에서 연소가 이루어진다. 따라서 토치 표면 $z=0$ 에서 H_2O 를 포함한 연소가스가 온도 T_k 로 분사된다고 가정한다.
- ④ SiCl_4 와 H_2O 의 분사속도는 같으며 토치 축방향을 따라서 변하지 않는다. ($v_z = \text{일정}$)
- ⑤ SiCl_4 와 H_2O 의 혼합은 확산으로만 이루어진다. 따라서 반경방향의 유체유동은 무시한다. ($v_r = 0$)
- ⑥ 반경방향의 확산에 비하여 축방향의 확산은 무시할만 하다. 즉 $\partial^2/\partial r^2 \gg \partial^2/\partial z^2$
- ⑦ SiCl_4 와 H_2O 의 화학반응은 양본적(stoichiometric)으로 이루어지며 이 반응면의 두께는 무시하며 이 면이 SiCl_4 와 H_2O 의 경계가 된다. 따라서 확산에 비하여 화학반응의 영향은 무시한다.
- ⑧ SiCl_4 와 H_2O 의 확산계수 D 는 같고 온도와 조성에 무관한 상수이다.
- ⑨ 혼합기체의 밀도 ρ , 열전도계수 k , 정압비열 c_p 는 온도에 무관한 상수이다.
- ⑩ Lewis 수=1, 즉 $\rho D = k/c_p$.

앞으로는 편의상 SiCl_4 를 'F'(연료), H_2O 를 'O'(산화제), F와 O의 반응생성물(SiO_2 와 HCl)을 'P'로 표기하기로 한다. 위에서 언급한 가정들을 사용하여 원통좌표계로 정상상태 연속방정식과 에너지 방정식을 표시하면 다음과 같다.

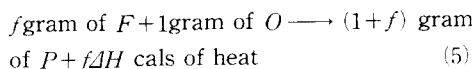
$$-\frac{\rho D}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial Y_F}{\partial r} \right) + \rho v_z \frac{\partial Y_F}{\partial z} = \dot{m}_F''' \quad (1)$$

$$-\frac{\rho D}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial Y_O}{\partial r} \right) + \rho v_z \frac{\partial Y_O}{\partial z} = \dot{m}_O''' \quad (2)$$

$$-\frac{\rho D}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial Y_P}{\partial r} \right) + \rho v_z \frac{\partial Y_P}{\partial z} = \dot{m}_P''' \quad (3)$$

$$-\frac{k}{c_p} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial h}{\partial r} \right) + \rho v_z \frac{\partial h}{\partial z} = \dot{q}''' \quad (4)$$

여기서 Y_F, Y_O, Y_P 는 각각 F, O, P의 질량분율, h 는 엔탈피를 의미한다 ($h = c_p T$). $\dot{m}_F''', \dot{m}_O''', \dot{m}_P''', \dot{q}'''$ 은 각각 단위부피당의 F, O, P의 질량생성물($\text{g}/\text{cm}^3/\text{sec}$)과 열방출물($\text{cal}/\text{cm}^3/\text{sec}$)을 의미한다. 또한 F와 O의 전반적인 화학양론식은



이 되며 여기서 f 는 F와 O의 질량 양론비율, ΔH 는 연료의 단위 질량 당 연소열(cal/g)을 의미한다. 따라서 반응물 관계식으로부터 다음이 성립된다.

$$-\frac{\dot{m}_F'''}{f} = -\dot{m}_O''' = \frac{\dot{m}_P'''}{1+f} = -\frac{\dot{q}'''}{f\Delta H} \quad (6)$$

식 (6)를 이용하여 식(1)~(4)를 Shwab-Zeldovich 변환하고(7) 다음의 무차원변수들을 도입하면,

$$\xi = \frac{r}{c}, \quad \eta = \frac{zD}{v_z c^2} \quad (7)$$

식(1)~(4)는 다음의 식으로 선형화된다.

$$\frac{\partial \beta}{\partial \eta} - \frac{1}{\xi} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\xi \frac{\partial \beta}{\partial \xi} \right) = 0 \quad (8)$$

이때 β 는

$$\begin{aligned} \beta_{FO} &= \frac{Y_F - fY_O}{Y_{Fi}} \\ \beta_{OP} &= \frac{Y_O + \frac{1}{1+f} Y_P}{Y_{Fi}} \\ \beta_{FP} &= \frac{Y_F + \frac{f}{1+f} Y_P}{Y_{Fi}} \\ \beta_{OT} &= \frac{Y_O + \frac{c_p}{f\Delta H} (T - T_i)}{Y_{Fi}} \\ \beta_{FT} &= \frac{Y_F + \frac{c_p}{\Delta H} (T - T_i)}{Y_{Fi}} \end{aligned} \quad (9)$$

를 의미한다. 여기서 Y_{Fi} 와 Y_{Oi} 는 각각 분사표면에서의 F와 O의 질량분율이다. 식 (8)의 경계조건들은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} \eta = 0, \quad 0 \leq \xi < a/c : \beta_{FO} = 1, \quad \beta_{OP} = 0, \quad \beta_{FP} = 1 \\ \beta_{OT} = 0, \quad \beta_{FT} = 1 \\ \eta = 0, \quad a/c \leq \xi < b/c : \beta_{FO} = 0, \quad \beta_{OP} = 0 \\ \beta_{FP} = 0, \quad \beta_{OT} = 0, \\ \beta_{FT} = 0 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \eta = 0, \quad b/c \leq \xi < 1 : \beta_{FO} = -\frac{fY_{Oi}}{Y_{Fi}}, \quad \beta_{OP} = \frac{Y_{Oi}}{Y_{Fi}} \\ \beta_{FP} = 0 \\ \beta_{OT} = \frac{Y_{Oi}}{Y_{Fi}} + \frac{c_p}{f\Delta H Y_{Fi}} (T_g - T_i) \\ \beta_{FT} = \frac{c_p}{\Delta H Y_{Fi}} (T_g - T_i) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \eta \geq 0, \quad \zeta = 0 \text{ \& } \zeta = 1; \quad \frac{\partial \beta_{Fo}}{\partial \zeta} = 0, \quad \frac{\partial \beta_{Op}}{\partial \zeta} = 0, \\ \frac{\partial \beta_{FP}}{\partial \zeta} = 0, \quad \frac{\partial \beta_{OT}}{\partial \zeta} = 0 \\ \frac{\partial \beta_{FT}}{\partial \zeta} = 0 \end{aligned} \quad (10)$$

위의 경계조건을 이용하여 식 (8)을 변수분리법을 사용하여 풀면 다음과 같은 해를 얻는다.

$$\beta_{Fo} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2}{k_n J_o^2(k_n)} \left\{ \frac{a}{c} J_1\left(k_n \frac{a}{c}\right) + \frac{f Y_{O_i}}{Y_{F_i}} \frac{b}{c} J_1\left(k_n \frac{b}{c}\right) \right\} \{1 - e^{-k_n \eta} J_o(k_n \zeta)\} \quad (11)$$

$$\beta_{Op} = 2 \frac{b}{c} \frac{Y_{O_i}}{Y_{F_i}} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{J_1\left(k_n \frac{b}{c}\right)}{k_n J_o^2(k_n)} \{1 - e^{-k_n \eta} J_o(k_n \zeta)\} \quad (12)$$

$$\beta_{FP} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \frac{a}{c} J_1\left(k_n \frac{a}{c}\right)}{k_n J_o^2(k_n)} \{1 - e^{-k_n \eta} J_o(k_n \zeta)\} \quad (13)$$

$$\beta_{OT} = 2 \frac{b}{c} \left(\frac{Y_{O_i}}{Y_{F_i}} + \frac{c_p (T_g - T_i)}{f \Delta H Y_{F_i}} \right) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{J_1\left(k_n \frac{b}{c}\right)}{k_n J_o^2(k_n)} \{1 - e^{-k_n \eta} J_o(k_n \zeta)\} \quad (14)$$

$$\beta_{FT} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2}{k_n J_o^2(k_n)} \left\{ \frac{a}{c} J_1\left(k_n \frac{a}{c}\right) - \frac{c_p (T_g - T_i)}{\Delta H Y_{F_i}} \frac{b}{c} J_1\left(k_n \frac{b}{c}\right) \right\} \{1 - e^{-k_n \eta} J_o(k_n \zeta)\} \quad (15)$$

위에서 k_n 은 1차 Bessel 함수 $J_1(k_n) = 0$ 을 만족하는 실수이다. 식 (11)~(15)로부터 가수분해 반응면의 형상, 반응생성물의 분포, 계의 온도분포를 구할 수 있다. 즉 반응면에서 $Y_F = Y_O = 0$ 이므로 식 (11)의 $\beta_{Fo} = 0$ 가 되어 반응면의 형상에 대한 η 와 ζ 의 관계식이 산출된다. 또한 반응면이 F와 O의 경계를 이루므로 반응면의 안 쪽에서는 $Y_O = 0$, 바깥쪽에서는 $Y_F = 0$ 임을 식 (12)와 (13)에 각각 대입하면 Y_P 의 분포가 구해진다. 즉 반응면의 안 쪽에서는 Y_P 분포가

$$Y_P = 2 \frac{b}{c} (1+f) Y_{O_i} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{J_1\left(k_n \frac{b}{c}\right)}{k_n J_o^2(k_n)} \{1 - e^{-k_n \eta} J_o(k_n \zeta)\} \quad (16)$$

되고 바깥 쪽에서는

$$\frac{f}{(1+f) Y_{F_i}} Y_P = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \frac{a}{c} J_1\left(k_n \frac{a}{c}\right)}{k_n J_o^2(k_n)} \{1 - e^{-k_n \eta} J_o(k_n \zeta)\} \quad (17)$$

가 된다. 온도분포 역시 반응면의 안 쪽에서는 Y_O

$= 0$, 바깥 쪽에서는 $Y_F = 0$ 임을 식 (14)와 (15)에 각각 대입하여 구해진다. 반응면의 안 쪽에서는 온도분포가

$$T = T_i + 2 \frac{b}{c} \left(\frac{f \Delta H Y_{O_i}}{c_p} + T_g - T_i \right) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{J_1\left(k_n \frac{b}{c}\right)}{k_n J_o^2(k_n)} \{1 - e^{-k_n \eta} J_o(k_n \zeta)\} \quad (18)$$

로 표시되고 바깥 쪽에서는

$$T = T_i + \frac{\Delta H Y_{F_i}}{c_p} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2}{k_n J_o^2(k_n)} \left\{ \frac{a}{c} \frac{\Delta H Y_{F_i}}{c_p} J_1\left(k_n \frac{a}{c}\right) - (T_g - T_i) \frac{b}{c} J_1\left(k_n \frac{b}{c}\right) \right\} \{1 - e^{-k_n \eta} J_o(k_n \zeta)\} \quad (19)$$

가 된다.

3. 계산

3.1 계산조건 선정

무한급수형으로 표현되는 계산을 수행하기 위해 급수 합에 대한 민감도(sensitivity) 해석을 수행하였으며 계산을 위해 선정된 상수들은 다음과 같다. 먼저 질량 양론비 f 는 (F의 분자량) / 2 × (O의 분자량)로 정의되는 값이고 a, b, c 는 Table 1의 수치로 택하였고, CH_4/O_2 의 예혼합은 당량비 $\phi = 0.3$ 에서 이루어진다고 가정하였다. $SiCl_4$ 의 토치 출구 $z=0$ 에서의 분출온도 T_1 를 예측하기 위해서는 Fig. 1에 나타난 토치의 구조를 먼저 이해해야 한다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 $SiCl_4$ 가 분출되는 중심원관의 끝 면이 토치 출구 $z=0$ 를 기준으로 토치 안 쪽으로 약 7 mm 정도 들어가 있기 때문에 $SiCl_4$ 가 중심원관에서 분출된 후 주위 연소가스로부터의 열전달로 인해 토치출구에 이르러 온도가 상승하게 된다. 이에 대한 이론적인 예측은 매우 복잡하기에 본 연구에서는 Hwang과 Daily⁽⁶⁾의 실험결과를 기준으로 T_1 를 결정하였다. H_2O 의 토치 출구에서의 분출온도 T_g 역시 복잡한 토치의 구조와 연소현상으로 인해 Hwang과 Daily⁽⁶⁾의 실험결과를 기준으로 $b < r < c$ 에서의 평균온도로 결정하였다. $SiCl_4$ 와 H_2O 의 상대확산계수 D 는 Chapman-Enskog 이론⁽⁷⁾을 이용하여 T_g 와 T_1 의 평균온도에서 구하였다. H_2O 의 $z=0$ 에서의 분출량을 나타내는 Y_{O_i} 는 온도 T_g 와 1 atm에서 CH_4/O_2

Table 2 Constants for Model Calculations

ϕ	0.3
f	4.72
a	2.38 mm
b	3.97 mm
c	17.465 mm
Y_{F1}	0.29
Y_{O1}	0.156
T_g	2000 K
T_1	930 K
v_z	300 cm/sec
D	0.75 cm ² /sec
c_p	35 J/mol/K
ΔH	133.7 kJ/mol

의 $\phi=0.3$ 에서의 연소반응에 대해 STANJAN⁽⁹⁾을 이용한 화학평형계산으로 산출하였다. 가수분해 반응의 연소열 ΔH 값은 JANAF 열역학 테이블⁽¹⁰⁾에서 구하였으며 c_p 값은 T_g 와 T_1 의 평균온도에서 공기의 정압비열 값을 사용하였다. SiCl_4 와 H_2O 의 분출속도 v_z 와 SiCl_4 의 질량분율 Y_{F1} 값은 Hwang과 Daily^(8,11)와 Allendorf 등⁽¹²⁾를 참고로 산출하였는데, CH_4/O_2 연소로 인한 온도상승이 밀도의 감소를 초래하므로 결과적으로 연소가스의 유속이 증가되어 결국 중심원관에서 분사속도와 크게 차이 나지 않게 된다. 따라서 앞에서 언급한 SiCl_4 와 연소가스 중의 H_2O 의 분사속도가 같다는 가정을 만족한다. 이들 상수값들은 Table 2에 요약되어 있다.

3.2 계산결과 및 토의

본 절에서는 선정된 계산조건에서의 가수분해 반응면의 형상과 계의 온도분포를 소개하고 기존의 실험결과와 비교 및 토의한다. Fig. 3은 가수분해 반응면 높이가 약 9.3 cm 임을 보여주는데, 이 면의 내부에는 SiCl_4 , 외부에는 H_2O 만이 존재하며 이 면에서 가수분해 반응이 양론적(stoichiometric)으로 일어나서 SiO_2 입자가 생성됨을 의미한다. 이와 같이 생성된 실리카 입자들은 반경방향으로의 확산과 축방향의 대류로 인해 반응면 안쪽으로 퍼지게 된다. Fig. 3은 또한 반응면 형상이 버너 출구에 매우 인접한 영역에서는 under-ventilated 형상이다가 곧 over-ventilated 형상으로 바뀌을

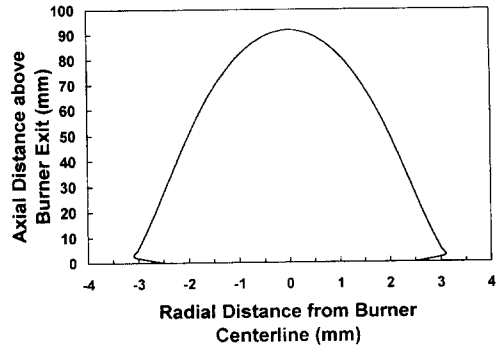


Fig. 3 Shape of hydrolysis reaction zone

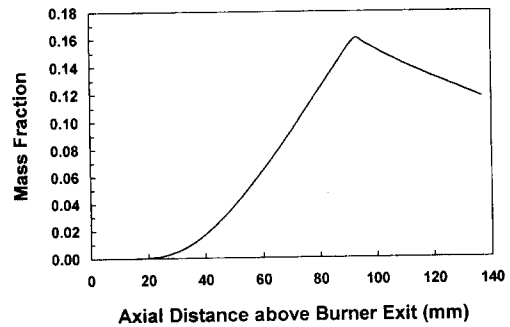


Fig. 4 Distributions of product mass fraction along centerline

보여주는데 이는 다음과 같이 설명된다; 버너출구 $z=0$ 에서 $0 \leq r \leq a$ 위치에서 분사되는 (편의상 $r \geq 0$ 인 구간만 논하기로 함) 연료(SiCl_4)는 반응에 필요한 산화제 H_2O 가 존재하지 않는 구간인 $a < r < b$ 방향으로 확산되다가 곧 $b \leq r \leq c$ 구간에서 분사되어 버너 중심선 방향으로 확산되는 산화제를 만나서 반응이 일어나게 된다. 이후에는 SiCl_4 가 버너 바깥 방향으로 확산되는 정도보다 H_2O 가 버너 중심선 쪽으로 유입되는 정도가 본 계산조건에서는 더 크므로 반응면 형상이 over-ventilated 가 된다. Fig. 4와 5는 가수분해반응 생성물의 질량분율(Y_p) 분포를 보여주는데 생성물의 일부가 실리카 입자이기 때문에 HCl의 분포를 고려하지 않는다면 Fig. 4와 5는 실리카 입자의 상대적인 분포를 보여준다고 할 수 있다. Fig. 4는 반응면에서 생성된 입자의 축방향 분포를 보여주는데 $z=9.3$ cm에서 생성된 실리카 입자들의 농도가 축방향의 대류로 인해 $z > 9.3$ cm에서 감소함을 알 수 있다. Fig. 5는 여러 축방향 위치에서의 반경방향 입자분포에

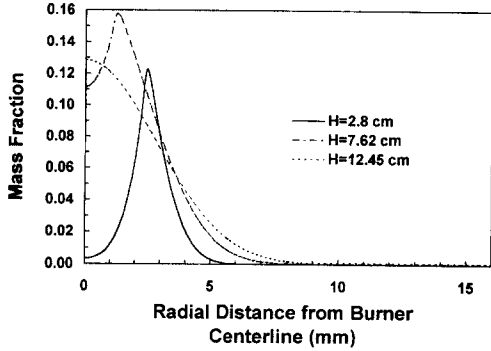


Fig. 5 Distributions of product mass fraction along radial direction

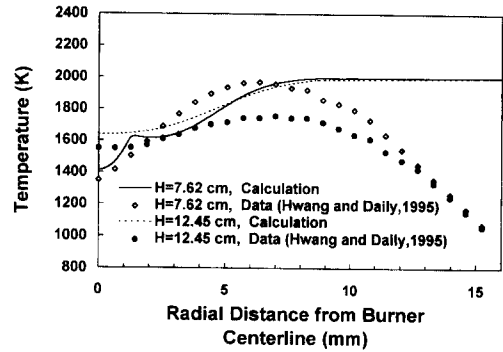


Fig. 7 Temperature distributions along radial direction

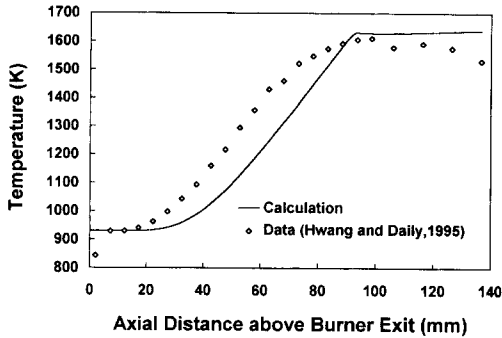


Fig. 6 Temperature distributions along centerline

대한 확산의 영향을 보여주는데 $z=12.45$ cm 인 반응면 밖에서는 Bautista 등⁽³⁾이 언급한대로 일종의 가우시안 분포 (Gaussian Distribution)를 이룰 수 있다. Fig. 6은 토치중심선 $r=0$ 를 따라 온도분포를 계산한 결과를 보여준다. 반응면내, 즉 $z < 9.3$ cm에서는 Hwang과 Daily⁽⁸⁾의 실험결과보다 약 100K 정도 낮게 예측이 되었는데 이에 대해서는 본 연구에서 고려되지 않은 산화반응이 한 원인이라고 생각된다. 또한 반응면 밖에서는 실험결과보다 계산결과가 높게 예측되었는데 실제 상황에는 연소생성물과 주위 대기와의 혼합으로 인한 축방향 온도강하가 있는데 본 Burke-Schumann 모델에서는 고려되지 않았기 때문이다. 즉 Fig. 6에는 축방향 길이가 $z=14$ cm 이상은 도시되지 않았으나 z 가 더 커질수록 계산치와 실험치와의 차이는 증가할 것으로 예상된다. Fig. 7은 $z=7.62, 12.45$ cm의 높이에서 반경방향 온도분포를 계산한 결과인데 본 연구가 반경방향의 대류를 고려하지 않았기에 Hwang과 Daily⁽⁸⁾의 실험결과와 잘 일치하지는 않

으나 반경방향 길이 r 이 7 mm 이내인 토치 중심선 근처에서는 정성적으로 근사한 결과를 보여주고 있다.

4. 결론

VAD와 OVD 같은 외부화학증착 공정에서 일어나는 실리카 생성 메커니즘 중 하나인 가수분해반응은 확산지배적 현상이므로 본 연구에서는 이를 일종의 Burke-Schumann 모델로 가정하여 이론적 연구를 수행하였다. 이를 위하여 공간상의 입자분포와 온도분포를 해석적으로 구하였으며 온도분포에 대해서는 기존의 실험결과와 비교하였다. 가수분해 반응면내에서의 반경방향과 축방향 온도분포는 실험결과와 잘 일치하였으나 반응면 밖에서는 실제상황에서의 대기와의 혼합, 축방향 확산, 반경방향 대류 등으로 인해 잘 일치하지 않았다. 반경방향으로의 실리카 입자분포는 Bautista 등⁽³⁾이 언급한 대로 일종의 가우시안 형태를 이루었다. 전반적으로 고전적인 Burke-Schumann 식 접근에 의한 간단한 해석적 방법으로도 복잡한 외부 화학증착 공정에서의 열 및 물질전달 현상을 정성적으로 이해할 수 있었다.

참고문헌

- (1) Li, T., 1985, *Optical Fiber Communication*, Academic Press.
- (2) Miller, T. J., Potkay, E. and Yuen, M. J., 1987, "Review of Chemistry and Mechanisms of Deposition for Optical Waveguide Fabrication by

- Vapor-phase Deposition from a Combustion Flame," *AICHE Symp. Series*, Vol. 83, No. 258, pp. 1~11.
- (3) Bautista, J. R., Walker, K. L. and Atkins, R. M., 1990, "Modeling Heat and Mass Transfer in Optical Waveguide Manufacture," *Chemical Engineering Progress*, Feb., pp. 47~52.
- (4) Tsai, H. C., Greif, R. and Joh, S., 1995, "A Study of Thermophoretic Transport in a Reacting Flow with Application to External Chemical Vapor Deposition Processes," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 38, pp. 1901~1910.
- (5) 이방원, 최만수, 황정호, 1995, "화염을 이용한 미세 입자 제조 공정에서 입자 크기 분포 해석," 대한기계학회 춘계 학술대회 논문집, pp. 427~431.
- (6) Kuo, K. K., 1986, *Principles of Combustion*, John Wiley & Sons, New York.
- (7) Kanury, A. M., 1977, *Introduction to Combustion Phenomena*, Gordon and Breach.
- (8) Hwang, J. and Daily, J. W., 1994, "Characterization of a VAD Flame Impinging on a Disk for a Study of Electric Field Enhanced Deposition," *Experimental Thermal and Fluid Science*, Vol. 8, pp. 58~66.
- (9) Reynolds, W. C., 1989, *STANJAN, the Element Potential for Chemical Equilibrium Analysis, Interactive Computer Programs for Chemical Equilibrium Analysis*, Dept. Mech. Eng., Stanford Univ., Stanford, Calif. .
- (10) Chase, M. W., Davies, C. A., Downey, J. R., Frurip, D. J., McDonald, R. A. and Syverud, A. N., 1986, *JANAF Thermochemical Tables, 3rd ed.*, American Chemical Society and American Institute of Physics for the National Bureau of Standards, Midland, MI.
- (11) Hwang, J. and Daily, J. W., 1995, "Electric Field Enhanced Deposition in Flame Synthesized Materials Manufacturing," *Journal of Aerosol Science*, Vol. 26, pp. 5~18.
- (12) Allendorf, M. D., Bautista, J. R. and Potkay, E., 1989, "Temperature Measurements in a Vapor Axial Deposition Flame by Spontaneous Raman Spectroscopy," *J. Applied Physics*, Vol. 66, pp. 5046~5051.