

<論 文>

빛의 간섭현상을 이용한 증기용착 성장속도 측정법의 실험적 연구

김 상 수* · 송 영 훈**

(1986년 2월 3일 접수)

Optical (Interferometric) Measurements of Vapor Deposition Growth Rate and Dew Points in Combustion Gases

Sang-Soo Kim and Young-Hoon Song

Key Words: Deposition Growth Rate(용착성장 속도), Interferometry(간섭현상을 이용한 박막의 광학적 측정), Soret Effect(열확산 효과), Evaporation Rate(증발속도), Dew Point(이슬점)

Abstract

An optical interference method was developed for measuring rapidly growing and evaporating liquid condensate films (e.g., Na_2SO_4 , K_2SO_4) on solid surface exposed to flowing combustion product gases at film thicknesses well below the onset of complications due to run-off. To develop this optical system, this study investigated the optical parameters (e.g., polarization state, incident angle, target roughness, etc.).

Trends for the $\text{Na}_2\text{SO}_4(l)$ and $\text{K}_2\text{SO}_4(l)$ deposition rates as a function of target temperature using this optical measuring system agree with the theoretical prediction of the vapor deposition. This study was able to extend the experimental range for vapor plus condensed phase transport and deposition.

While previously unable to measure the evaporation rates interferometrically, these rates are estimated from the results of the investigation of polarization states.

기 호 설 명

d_p : 입자의 직경

F_{soret} : 열확산에 관한 보정계수(Correlation factor)

n : 막의 굴절율

t : 막의 두께

희랍문자

λ : 빛의 파장

θ : 입사각

ϕ : 굴절각

1. 서 론

선박, 항공기, 산업용 터어빈 엔진에서 연소반응을 거친 연소가스 속의 무기염류는 연소가스보다 낮은 온도로 유지되어야 하는 열기관 벽에서 응축과정을 통해 막을 형성하면서 용착된다. 용착된 무기염류는 열기관 벽, 터어빈 날개에서 고온부식을 일으키게 하는데 기

* 정회원, 한국과학기술원 기계공학과

** 한국기계연구소 열유체실

본 단계가 되어 열기관 효율을 저하시킨다^(1,2).

증기상태인 무기염류의 이동-용착의 기본적인 기구는 열확산(thermal diffusion), 농도확산, 대류이동, 난류이동 등이 포함되나, Rosner는 온도구배에 의한 확산인 열확산과 농도 구배에 의한 농도확산을 가지고 증기상태인 무기염류의 고체표면으로의 용착에 관한 이론을 전개하였다^(3,4).

한편, 용착에 관한 실험방법으로 종래에는 터빈 날개를 모델한 표적에 장시간(10이간 이상) 용착을 행하고 용착물의 무게를 측정하는 방법(gravimetric method)을 택하여 왔으나

(1) 응축된 액체막의 두께가 두꺼워짐에 따라서 표면장력, 연소가스에 의한 전단응력의 영향이 액체막에 부차적인 유동을 일으키는 문제⁽⁶⁾

(2) 용착의 시간에 따른 이력현상의 모호함을 배제할 수 없다는 문제

(3) 장시간 실험조건을 연소실험에서 유지하는 어려움과 같은 문제를 안게 되므로 용착과 동시에 용착성장속도를 측정할 수 있는 실제시간(real time) 측정법이 요구되었다.

본 연구는 이와 같은 필요성에 의해 빛의 간섭현상을 이용하여 액체막이 부차적인 유동을 일으키기 이전에 용착성장속도를 정량적으로 측정할 수 있었고, 터빈 날개의 부식에 직접적으로 문제를 일으키는 황산나트륨과 황산칼륨의 용착성장속도를 측정하였다. 본 연구는 종래 액체막의 성장속도만을 빛의 간섭현상을 이용하여 측정해오던 측정범위를 광원으로 사용된 레이저의 편광상태, 굴절율, 입사각등의 변화에 따른 간섭신호의 비교연구를 통해 고체상태막의 성장속도 및 막이 기화되어 증발되는 현상도 측정하였다. 따라서 증기상태의 무기염이 금속표면에 용착될 때 적용해온 Rosner의 이론을 실험결과와 비교할 수 있었고 응축된 상태로 증기에 포함되어 있는 경우와 이슬점(dew point : 표면에 더 이상 용착이 일어나지 못하는 표면온도)의 해석에 보다 확장된 개념들을 도입할 수 있었다^(7,8).

2. 실험

2.1 실험장치

본 실험은 터빈 엔진의 연소 시 터빈 날개에 무기염류가 용착되는 것을 모델로 한다. 실험장치는 광학장치, 연소장치, 가스공급장치, 무기염류 발생장치, 그리고 터빈 날개를 모델로한 표적 등으로 구성되며

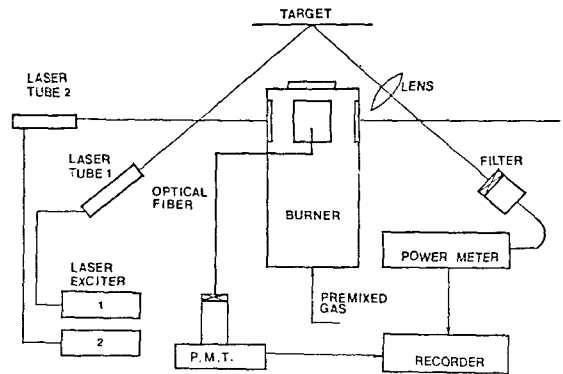


Fig. 1 Schematic diagram of optical and combustion system

광학 및 연소장치의 개략도는 Fig. 1과 같다.

레이저 1은 평면편광(plane polarized)이 된 헬륨-네온 레이저(4 mW, wave length : 632.8 nM)로 표적을 향해 쏘아주게 되며 액체막 표면에서 반사된 빛과 막을 투과하여 표적 표면에서 반사된 두 빛이 서로 간섭현상을 일으키게 된다. 렌즈는 반사된 빛을 모아주고, 모어진 빛은 필터로 보내진다. 필터는 가열된 표적에서 자체적으로 발광된 빛이 광신호에 포함되지 못하고 광원인 레이저 파장만을 통과시켜 주는 역할을 한다. 필터는 632 ± 7 nM의 파장만을 통과시키는 성능을 가진다. 필터를 통과한 빛은 광량 측정장치(power meter)를 통과하여 전기적인 신호로 변환된다. 이 신호는 레코더(4-pen flat-bed recorder)에 보내어져 시간의 함수로 기록된다.

레이저 2는 연무체 발생장치에서 발생되어 연무체 상태로 버어너로 공급된 무기염류와 만나 광산란 신호를 만든다. 광산란 신호는 연무체의 수 밀도를 상대적으로 나타내게 된다. 광산란 신호는 레이저 2의 진행방향과 직각인 방향에서 광섬유를 통해 받아지고 이신호는 세기가 약하기 때문에 광전자 증배관(photomultiplier tube)으로 보내져서 증폭됨과 동시에 전기적 신호로 바뀌어 레코더에 기록된다.

버어너는 화염이 평면화염으로 되도록 제작하고, 증류화염을 만들기 위해 예혼합가스를 조절한다. 화염면에서 높이가 올라 갈 수록 온도가 내려가면서 동시에 불안정하게 되는 데 이는 연소반응을 마친 연소가스가 주위의 공기를 끌어 들이기 때문이다. 주위의 공기가 유입되는 것을 지연시켜 주어 화염의 안정화를 이루기 위해 버어너 둘레에 질소 커어튼을 만들어 준다. 따라서 연소가스 온도가 화염면으로부터 떨어진 위치에서도 안정되므로 낮은 표적표면 온도에서의 용착성장속도를

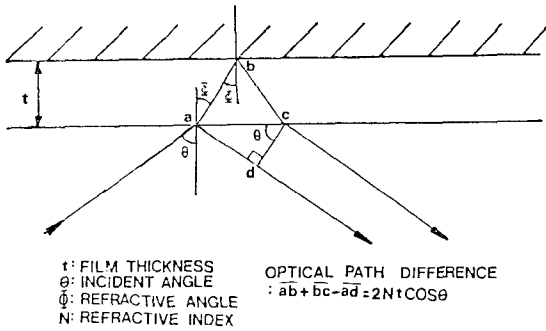


Fig. 2 Interference phenomenon

측정할 수 있기 때문에 실험의 범위를 종래보다 확장할 수 있고, 연소가스와 표적표면의 온도 측정시 복사열의 영향으로 인한 온도측정의 오차를 줄일 수 있다.

2.2 간섭현상의 원리

Fig. 2에서 처럼 표적표면에 형성된 무기염류의 막(고체, 액체)에 빛이 입사되면 빛이 그 막의 표면에서 반사된 것과 막을 통과하고서 금속표면에서 반사된 빛으로 나누어 지며 두 빛의 광로정차(optical path difference)는 $2nt \cos \phi$ 이고, 빛은 매질이 소한 곳에서 밀한 곳으로 반사될 때 위상차가 $\lambda/2$ 만큼 생기고 그 반대의 경우에는 위상차가 생기지 않으므로 $2nt \cos \phi = p\lambda$ (p : 정수)일 때 간섭된 빛의 강도는 최대가 된다⁽⁹⁾. 이 때의 t 의 값을 t^* 라고 하면 레이저의 파장, 액체막의 굴절율 및 입사각이 일정할 때 특성 두께 t^* 만큼 액체막 두께가 변하면 간섭된 빛의 세기는 그 때마다 최대, 최소값을 주기적으로 나타낸다. 간섭된 광신호는 광학측정장치를 통하여 레코더에 시간을 독립변수로 하여 기록된다. 액체막의 성장속도가 빠른 경우에는 간섭된 광신호의 최대, 최소값의 주기가 짧아지고, 반대로 느릴 경우에는 그 주기가 길어진다. 따라서 Fig. 3(a)에서 볼 수 있는 것과 같은 파형곡선의 그래프를 얻게 되고 이 파형의 주기를 이용하여 막의 두께를 다른 광학측정법(예: Re-evaporation method⁽⁶⁾, Reflectivity method^(10,11))과는 달리 상대값이 아닌 절대값으로 측정하게 된다. 간섭현상에 사용된 레이저 광원은 단색광(monochromatic wave)이고 편광된 빛이므로 간섭효과가 백색광보다 뚜렷하다.

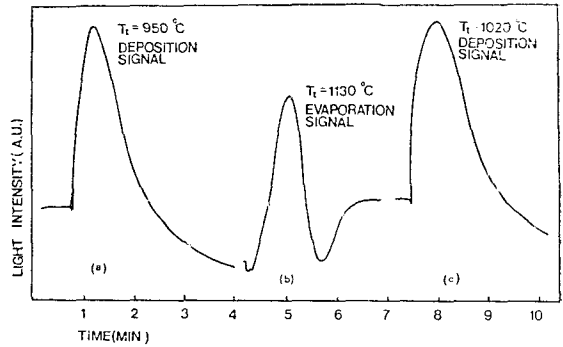
2.3 평면편광된 빛(Plane Polarized Light)의 고찰

여기서는 P-편광, S-편광을 중심으로 반사율과 반

사된 빛의 위상에 대해 고찰해보기로 한다. 이 같은 광학적인 특성에 따라 간섭된 광신호는 각기 다르게 나타나므로 용착성장속도 측정에 앞서 여러 종류의 광학조건 중에서 액체막 성장속도측정의 최적조건을 찾코자 한다.

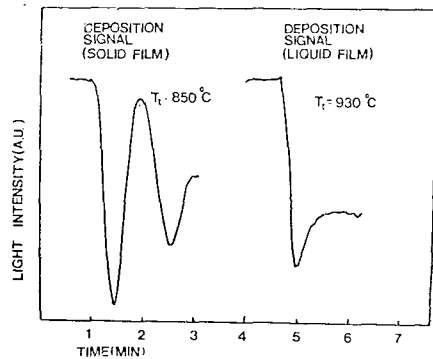
(1) 편광 상태에 따른 반사율

빛이 막에서 반사될 때 S-편광으로 입사된 경우 P-편광의 경우보다 반사된 빛의 강도가 크게되며 또한 입사각이 커지면 어느 편광이든지 빛의 반사율은 커지게 된다⁽¹²⁾. 본 실험에서는 반사된 빛의 세기를 크게 하고, 광로차를 가능한 크게 주어 간섭된 신호를 뚜렷이 하기 위해 입사각을 실험장치가 허용하는 한도에서 크게 한다.



(a) P-polarized deposition signal
Target temperature: 950°C
(b) P-polarized evaporation signal
Target temperature: 1130°C
(c) P-polarized deposition signal
Target temperature: 1020°C

Fig. 3 Interference signals (Na₂SO₄)



(a) S-polarized deposition signal
Target temperature: 850°C
(b) S-polarized deposition signal
Target temperature: 930°C

Fig. 4 Interference signals (Na₂SO₄)

(2) 편광상태에 따른 광신호의 변화

평면편광은 액체막에서 반사되면 일반적으로 편광상태의 변화를 보이지 않고 반사되지만 금속면에서 반사될 때는 금속표면에서 빛의 흡수가 일어나 위상의 변화를 일으켜 타원편광으로 변하게 된다. 따라서 평면편광으로 입사된 빛은 입사각, 금속의 종류, 편광상태에 따라 자기 다른 형태의 간섭형태를 보인다. Fig. 4는 S-편광으로 입사된 경우의 간섭형태이다. 본 실험에서는 P-편광을 선택하여 막 두께의 성장속도를 측정한다.

(3) 고체막과 액체막의 경우의 간섭신호

무기염류가 황산나트륨인 경우 표적온도가 황산나트륨의 용융점(884°C)을 경계로 간섭양식이 달라진다. 액체막인 경우 간섭된 빛의 세기변화는 한번만 관찰되고, 고체막인 경우에는 주기적인 증폭-감쇠현상을 보이면서 관찰된다. 액체막은 고체막의 경우보다 빛의 흡수율이 높기 때문에 액체막 두께가 어느정도 성장한 후에는 간섭현상이 일어나지 않는다[Fig. 4(b)].

본 실험은 막의 두께가 성장하는 용착성장속도 뿐만 아니라 감소하는 증발속도도 측정할 수 있었다. 액체막이 성장하면서 기록된 간섭형태를 관찰해 보면 최대 점을 축으로 좌우대칭에서 벗어나 있음을 알 수 있다. 그러나 막이 고체인 경우에는 그런 점을 볼 수 없었는데 이는 액체막이 작은 규모의 2차적인 유동을 하고 있음을 의미한다.

3. 실험결과 및 분석

3.1 온도구배에 따른 용착성장속도

표적온도에 따른 황산나트륨의 용착성장속도 그래프(Fig. 5, 6, 7)를 검토해 보면 기울기의 차이에 따라 표적온도를 세 구간으로 나눌 수 있다. 첫째는 표적온도가 황산나트륨의 용융점 이하인 온도구간으로 용착성장속도는 표적온도에 좌우되지 않고 일정하다(Fig. 5). 다음은 표적온도가 용융점보다 높으나 이슬점(1150°C) 보다는 약 30°C 가량 낮은 온도구간으로 이 구간에서의 용착성장속도는 표적온도의 증가에 따라 거의 선형적인 형태로 감소하며, 마지막으로 이슬점 부근에서의 용착성장속도는 급격하게 떨어져 이슬점에 이른다(Fig. 6). 황산칼륨의 용착성장속도 그래프도 황산나트륨의 경우와 비슷한 형태의 변화를 보이고 있다(Fig. 7).

자기 다른 기울기를 보인 세 온도구간을 하나씩 분석해 보기로 한다.

(1) 표적온도가 황산나트륨의 용융점 이하인 온도구

간에서는 열 및 물질 경계층의 온도가 낮으므로 균일, 비균일 응축(homogeneous, heterogeneous condensation)이 일어나게 된다. 이 때 무기염류의 증기(Vapor Size : $3 \times 10^{-3} \mu\text{m} < d < 10^{-2} \mu\text{m}$)는 응축된 작은 입자로 성장하게 된다. 따라서 용착될 무기염은 증기상태 뿐만 아니라 상당수가 입자상태로 존재하게 된다. 열확산과 농도확산을 위해서는 분자의 운동가능성(mobility)이 전제되어야 하는데, 응축된 입자는 그 운동가능성이 증기(여기서 말하는 증기의 크기는 분자운동을 하는 크기를 말함)보다 훨씬 적기 때문에 확산현상이 있어

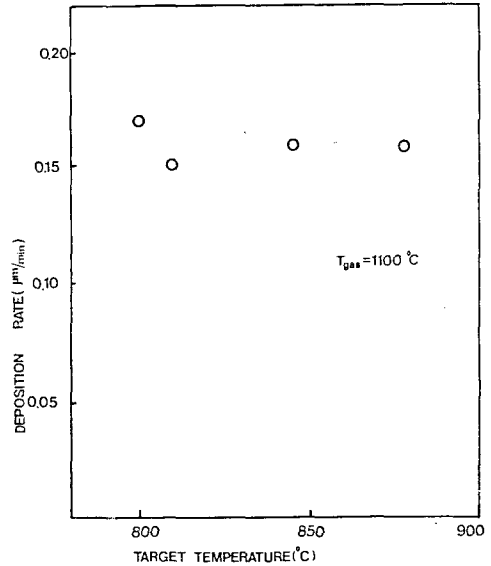


Fig. 5 Na₂SO₄ deposition rate vs. target temperature

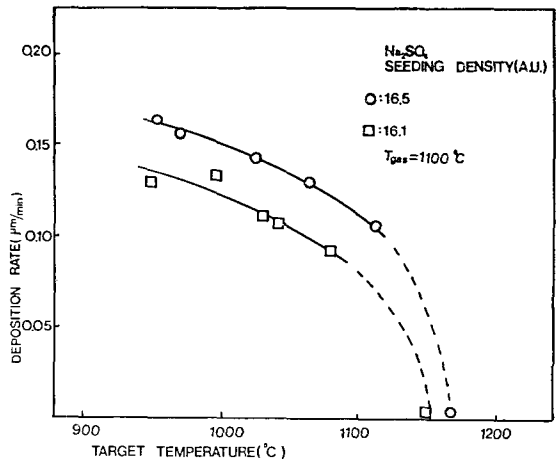


Fig. 6 Na₂SO₄ deposition rate vs. target temperature, Gas temperature: 1100°C

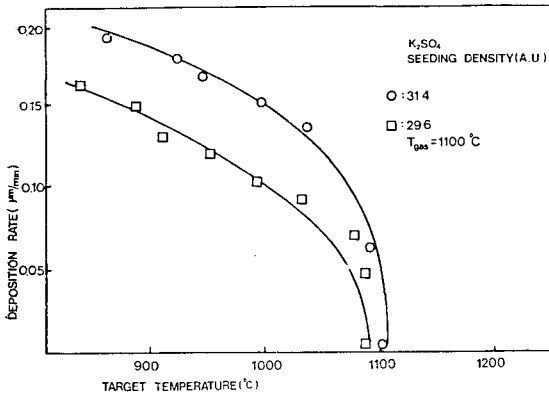


Fig. 7 K_2SO_4 deposition rate vs. target temperature, Gas temperature: $1100^\circ C$

서 온도구배에 의한 영향이 줄어들게 된다.

(2) 표적온도가 용융점보다 높으나 이슬점보다는 다소 낮은 온도에 이르는 온도구간에서는 열경계층내의 온도구배에 의한 가변계수(variable property)와 열확산에 의해 용착성장속도가 표적온도의 증가에 따라서 감소한다. 여기서 용착성장속도가 감소되는 주된 이유는 가변계수에 있다. 작은 입자의 용착인 경우에는 열확산에 의한 용착속도는 온도구배에 선형적인 관계를 갖는 반면 증기용착의 경우에는 농도구배에 의한 확산, 가변계수의 영향에 의해 대체적으로 결정된 용착성장속도값에 열확산계수(F_{soret})를 곱해준 형태로 영향을 주게 된다⁽¹⁰⁾.

(3) 용착성장속도가 급격히 떨어진 이슬점 부근을 이해하기 위해서는 Fig. 8의 증발속도 그래프를 고려해야 한다. 즉, 이 온도구간의 용착성장속도는 증발에 영향을 받아 급격히 감소한 것이며 지금까지 가정해온 교착계수(sticking coefficient)가 1이라는 것이 여기서 더 이상 성립되지 않게 된다. 교착계수란 표적에 용착된 입자수를 표적에 충돌한 입자수로 나눈 값을 의미한다. 여기서 증발속도의 측정은 용착을 일정시간 동안 행하고난 다음 무기염류를 더 이상 보내지 않고서 측정할 것인데 무기염류가 공급될 때와는 다른 이슬점을 보이는 것은 이슬점이란 단순히 열역학적인 계산에 의해서가 아니라 이동현상도 함께 고려해야 한다는 사실을 분명히 보여주고 있는 것이다.

3.2 농도에 따른 용착성장속도

표적표면에 부착된 무기염류의 농도와 물질 경계층 외부의 농도를 정량적으로 측정할 것이 아니라 광산란

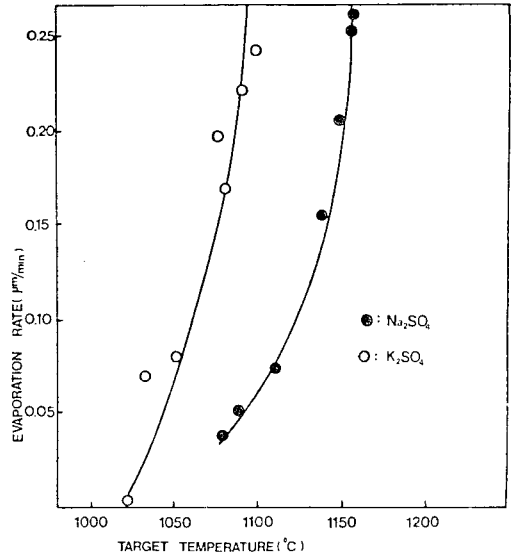


Fig. 8 Na_2SO_4 , K_2SO_4 evaporation rate vs. target temperature, Gas temperature: $1100^\circ C$

법을 사용하여 연소직전의 연무체 상태인 무기염류의 농도를 상대적으로 비교를 했기 때문에 여기서 언급하게 되는 농도를 직접 농도구배에 따른 용착성장속도와 관련 짓는 것은 무리가 있다. 그러나 증기상태의 무기염류는 연무체의 농도가 증가하면 그 농도도 증가함을 추론할 수 있고 Fig. 6, 7의 실험결과를 연무체의 농도가 증가하면 용착성장속도도 증가함을 보이고 있다. 한편 농도가 증가하면 이슬점이 상승하고 있음을 실험 결과는 보여주고 있다. 이 그림에서 seeding density는 2.1절에서 설명된 바와 같이 연소 직전의 혼합가스 속에 포함된 연무체 상태의 무기염류의 농도를 나타내는 것으로 광산란에 의한 광신호가 광전자 증배관에 의하여 전기적 신호로 바뀌어 전압으로 나타난 수치이다.

3.3 이슬점에 대한 고찰

이슬점은 우선 농도에 좌우됨을 실험을 통하여 알 수 있고, 황산나트륨과 황산칼륨의 이슬점을 비교해 보면 황산칼륨의 이슬점이 낮은 사실을 알 수 있다. 앞서 언급한 바와 같이 본 실험은 물질경계층에서의 농도를 정량적으로 측정하지 못한 약점이 있지만 연무체의 농도를 결정하는 물질의 비중, 점도 등이 황산나트륨이나 황산칼륨은 비슷하므로, 두 물질의 농도가 다르기 때문에 이슬점이 달라졌다고 할 수는 없다. 두 물질의 이슬점이 서로 다르게 된 원인은 두 물질의 증

발온도와 속도에 기인한다고 생각된다. 왜냐하면 Fig. 8에서 두 물질의 이슬점 온도차만큼 두 물질의 표적 온도에 따른 증발속도 그래프를 이동시켜 보면 두 그래프는 거의 일치하기 때문이다. 따라서 이슬점은 앞서 살펴본 용착성장속도의 기울기 변화와 두 물질의 이슬점 차이로부터 물질의 증발속도에 관련되어 있음을 알 수 있다.

4. 결 론

(1) 빛의 간섭현상을 이용한 용착성장속도측정은 액체막의 이차적인 유통이 응착기구에 영향을 행사하기 이전에 측정이 가능하므로 온도, 온도구배에 따른 확산이론을 뒷받침하려는 실험으로서 매우 유용하고, 용착성장속도를 정량적으로 측정할 수 있다.

(2) 무기염류의 부착은 Rosner 등에 의해 강조되어 온 온도, 온도구배에 따른 확산이론 뿐만이 아니라, 가스온도 및 표적온도에 따라서는 입자확산이 포함될 수 있고 이 경우에는 그의 이론의 예측과 다른 양상을 보이게 된다.

(3) 이슬점은 온도 및 가스온도에 의해서 좌우되며 열역학적인 계산 외에도 가스온도를 결정하는 유동조건에 의해서도 좌우된다.

(4) 연소가스에 포함된 무기염류가 증기만의 상태일 때 용착성장속도는 표적의 온도 뿐 아니라 농도에도 영향을 받는다.

(5) 앞으로 본 실험에 이어 추진되어야 할 연구로는
(i) 가스온도를 보다 자유롭게 조절하여 응축 상태가 지배적으로 이동에 포함된 경우의 용착성장속도 및 이슬점에 관한 연구와 증기이동만 하는 경우에서 가스 온도에 따른 이슬점 이동의 연구,

(ii) 보다 개량된 광학장치를 사용한 타원편광측정법(ellipsometric method)을 이용하여 막에서 반사된 빛의 편광의 변화를 측정하여 여러 종류의 화학물질이 동시에 용착되었을 경우에 그 구성비를 밝히는 연구 등을 추천하고 싶다.

References

(1) B. Palmer and J.M. Beer, Combustion Technology, Some Modern Developments, Chap. 2, pp. 35, Academic Press, New York, 1974
(2) J.W. Hastie, High Temperature Vapors, Chap.

3, pp. 91, Academic Press, New York, 1975
(3) R. Srivastava and D.E. Rosner, A New Approach to the Correlation of Boundary Layer Mass Transfer Rates with Thermal Diffusion and/or Variable Properties, Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 22, pp. 1281~1294, 1979
(4) D.E. Rosner and B.K. Chen, Chemically Frozen Multi-Component Boundary Layer Theory of Salts and/or Ash Deposition Rates from Combustion Gases, Combustion Science and Technology, Vol. 20, pp. 87~106, 1979
(5) R.J. Bishop and K.R. Cliffe, Condensation Behaviour of Sodium Chloride During Convective Heat Transfer, J. of the Inst. of Fuel, pp. 441~488, 1970
(6) D.E. Rosner and B.S. Liang, Laboratory Studies of the Deposition of Alkali Sulfate Vapors from Combustion Gases Using a Flash-Evaporation Technique, Submitted to Chemical Engineering Communications, 1985
(7) K.L. Luthra and H.S. Spacil, Impurity Deposits in Gas Turbines from Fuels Containing Sodium and Vanadium, J. Electrochem. Soc.: Solid-State Science and Thechnology, pp. 649~655, Mach. 1982
(8) D.E. Rosner and R. Nagarajan, Transport-Induced Shifts in Condensate Dew-Point and Composition in Multicomponent Systems with Chemical Reaction, Chemical Engineering Science, Vol. 40, No. 2, pp. 177~186, 1985
(9) R.J. Lothian, Optics and Its Uses, Chap. 8, pp. 105, Van Nostrand, New York, 1975
(10) D.E. Rosner and S.S. Kim, Optical Experiments on the Thermophoretically Augmented Submicron Particle Deposition from "Dusty" High Temperature Gas Flows, J. of Chemical Engineering, Vol. 29, pp. 147~157, 1984
(11) 김상수, 장력상, "열확산에 의한 미소입자의 부착현상에 관한 실험적 연구", 대한기계학회논문집, 제 9권 제 3호, pp. 379~386, 1985
(12) F.A. Jenkins and H.F. White, Fundamentals of Optics, Chap. 25, pp. 523, McGraw-Hill, London, 1976