〈논 문〉

수정된 화학증착방법에서 비정상 열 및 물질전달 해석

박경순* · 최만수**

(1996년 4월 22일 접수)

A Study of Unsteady Heat and Mass Transfer in the Modified Chemical Vapor Deposition Process

Kyong Soon Park and Mansoo Choi

Key Words: Heat and Mass Transfer(열 및 물질전달), MCVD(수정된 화학증착), Particle Deposition(입자부착)

Abstract

An analysis of unsteady heat and mass transfer in the Modified Chemical Vapor Deposition has been carried out including the effects of chemical reaction and variable properties. It was found that commonly used quasi-steady state assumption could be used to predict overall efficiency of deposition, however, the assumption would not provide detailed deposition profile. The present unsteady calculations of wall temperature profile and deposition profile have been compared with the existing experimental data and were in good agreement. The effects of variable torch speed were studied. Linearly varing torch speed case until time=120s resulted in much shorter tapered entry than the constant torch speed case.

기 호 설 명

C_1, C_2	: Plank의 spectral 에너지 분포 상수 (0.5955219×10^{-16} W·m²/sr, 0.014387659 m·K)
c_p	: 정압비열
D_i	: i화학종($SiCl_4$, O_2, SiO_2, Cl_2)의 확산계수
E	: 입자의 증착효율
E_a	: 활성화 에너지
ΔH_{SiCl4}	: $SiCl_4$의 생성 엔탈피 ([J/kg])
h	: 대류열전달계수
K	: 열영동계수
k	: 열전도도
k_B	: Boltzmann 상수
$k_{conduction}$	: 순수한 열전도도
$k_{radiation}$	: 복사의 확산효과에 의한 열전도도
L	: 원관의 길이
m	: 질량
M_i	: i화학종($SiCl_4$, O_2, SiO_2, Cl_2)의 분자량
n	: 굴절률
p	: 압력
q_{max}	: 최대열유속
r	: 반경방향 좌표
$\bar{R}$	: 일반기체상수
R_i	: 원관의 내부 반지름
R_o	: 원관의 외부 반지름
r_{SiCl4}	: $SiCl_4$의 생성률 ([kg/m³s])
t	: 시간
T	: 온도
T_0	: 유입기체의 온도
u	: 축방향 속력

*회원, 서울대학교 대학원
**회원, 서울대학교 기계공학과

v : 반경방향 속력
$\vec{V}$: 유체의 속도
V_0 : 유입기체의 평균속력
$\vec{V_T}$: 열영동속도
V_{torch} : 토치의 이송속도
x : 반경방향 좌표
x_{start} : 토치 이송시작위치
x_{torch} : 토치 위치
x_{travel} : 토치의 이송거리
Y_i : i화학종($SiCl_4$, O_2, SiO_2, Cl_2)의 질량분율
$Y_{SiCl4,0}$: 유입구에서 $SiCl_4$의 질량분율

그리스문자

α : Rosseland 확산계수
δ : 입자부착두께
λ : 열유속분포계수
ν : 동점성계수
ν'' : i화학종($SiCl_4$, O_2, SiO_2, Cl_2)의 화학량(Stoichiometric)계수
ν_0 : 유입기체의 동점성계수
ρ : 밀도
ρ_{quartz} : 석영관의 밀도
ρ_0 : 유입기체에서의 밀도
σ : Stefan-Boltzmann 상수
$\tilde{\tau}$: 스트레스 텐서

I. 서 론

고순도의 광섬유제조 방법중 하나인 수정된 화학증착(Modified Chemical Vapor Deposition, MCVD)방법을 간략하게 설명하면 다음과 같다. $SiCl_4$, $GeCl_4$, $POCl_3$ 등의 액체가 담긴 버블러에 산소를 통과시켜, 기화된 화학기체를 실리카 원관에 유입시킨다. 산소와 화학기체의 혼합물은 원관 내부를 흐르다가 외부의 토치에 의해 가열되어 화학반응을 일으키게 된다. 화학반응에 의해 생성된 실리카 입자는 내부기체와 함께 이동하다가, 토치 가열을 받지 않은 상대적으로 낮은 온도의 원관 쪽으로 열영동력(thermophoretic force)을 받아 원관 내부에 부착하게 된다. 토치가 진행함에 따라 입자 부착층은 한 층을 이루게 되는데, 각각의 토치 이송시마다 화학기체의 조성을 달리함으로써 부착입자층의 굴절률을 조절할 수 있다. 광섬유 모재의 입자부착층의 모양을 보면, 토치 이송 시작부위에서부터 어느 정도의 범위까지는 입자부착층의 두께가 불균일하다. 이 불균일한 부착층은 쓸모 없는 부분으로 제거되고, 최종제품의 품질에도 큰 영향을 미치므로, 이 부분을 효과적으로 줄이는 것이 중요하다.

MacChesney 등[1]이 MCVD 방법을 발표한 이래 이 분야는 많은 연구자에 의해 꾸준히 연구되어 왔다. Simpkins 등[2]은 MCVD에서 입자부착의 주 메커니즘은 열영동이라고 밝혔다. Walker 등[3]은 열영동으로 인한 입자의 이동 및 부착에 대해 실험적, 수치적으로 연구하여 효율과 최소온도간의 상관관계를 제시하였다. 증착률을 높이기 위하여 Wang 등[4]과 Morse 등[5]이 Laser를 사용하는 방법을 제안하여 그 실용성을 검토한 바 있다. Kim과 Pratsinis[6]는 생성되는 실리카 입자의 거동에 대한 입자역학방정식을 해석하였다. 불균일 부착길이를 줄이는 방안으로 환상형 내부원관을 사용하는 방법이 Fiebig 등[7]과 Choi와 Park[8]에 의해 연구되었다. 원관의 회전과 부력항을 고려한 3차원 연구는 Choi 등[9]과 Lin 등[10]에 의해 연구되었다. Park과 Choi[11]는 반복적인 토치의 이송효과와 원관벽 두께의 영향을 고려하는 two-torch 모델을 제안하였으며, 벽면온도 및 증착효율을 기존의 실험치와 비교·검토하였다. Cho와 Choi[12]는 실험적연구를 수행하여, 화학반응에 의한 최소온도의 증가를 측정했고, 실험과 준정상상태 해석에서의 증착두께를 비교하였다. Joh 등[13]은 유입 사염화규소의 몰분율에 따른 화학반응의 영향을 수치적으로 해석하여, 유입 몰분율이 큰 경우 토치 후방에서 급격한 반응(spike)이 일어나 입자부착이 이루어지는 점을 보였다.

이제까지 연구자들이 가정해 왔던 준정상상태는 토치 속도가 일정하여야 하며, 원관입구에서 어느 정도 떨어진 구간부터 적용될 수 있다는 한계가 있다. 따라서, 토치속도가 변화하는 경우나 정상상태 해석이 적용되지 않는 원관입구영역에서의 부착을 정확히 예측하기 위해서는 비정상 열 및 물질전달 해석이 필요하다. 통상적인 MCVD 방법에서는 아직까지 수행되어오지 않았던 이러한 비정상 상태해석은 기존에 사용되어 오던 준정상상태 해석의 가정이 어느 구간까지 적용될 수 있는지 밝혀줄 것이다. 화학반응이 포함되는 비정상상태의 질량, 운동

량, 에너지, 화학종 보존방정식을 해석하여 MCVD 공정에서 비정상 열 및 물질전달의 영향을 파악하였고, 기존의 정상상태 모델링과 비교함으로써 기존 모델링의 한계를 파악하였다. 기존의 실험결과와 비교하여 비정상상태 해석의 타당성을 검증하였고, 토치 속도를 시간에 따라 변화시키는 경우의 입자부착을 계산함으로써 변화하는 토치 속도를 이용하여 증착성능을 향상시킬 수 있음을 보였다.

2. 해 석

2.1 지배방정식

Fig. 1에 나타낸 바와 같은 축대칭 원관유동에서 화학반응, 온도에 따라 변화하는 물성치 등을 고려한 비정상 질량보존, 운동량보존, 에너지보존, 화학종보존방정식 등은 다음과 같다.

질량보존

$$\frac{\partial \rho}{\partial t}+\nabla\cdot(\rho\vec{V})=0 \tag{1}$$

운동량보존

$$\rho\frac{\partial \vec{V}}{\partial t}+\rho\vec{V}\cdot\nabla\vec{V}=-\nabla p+\nabla\cdot\bar{\tau} \tag{2}$$

에너지보존

$$\rho c_p\frac{\partial T}{\partial t}+\rho c_p\vec{V}\cdot\nabla T$$
$$=\nabla\cdot(k\nabla T)+r_{SiCl_4}\Delta H_{SiCl_4} \tag{3}$$

$\triangle H_{SiCl_4}$는 $SiCl_4$의 화학반응에 의한 반응열을 의미한다. r_{SiCl_4}는 화학반응으로 인한 생성항을 나타내는데, French 등[14]의 실험식을 이용하였다.

$$r_{SiCl_4}=(k_0+k_1\rho Y_{O_2})\,e^{\frac{-E_a}{RT}}\rho Y_{SiCl_4} \tag{4}$$

여기에서 E_a는 활성화 에너지를 k_0, k_1은 실험상수를 가리킨다.

화학종보존

$$\rho\frac{\partial Y_i}{\partial t}+\rho\vec{V}\cdot\nabla Y_i=\nabla\cdot(\rho D_i\nabla Y_i)$$
$$+\nu_i''\frac{M_i}{M_{SiCl_4}}r_{SiCl_4} \tag{5}$$

여기에서 고려하는 화학종은 $SiCl_4$, O_2 그리고 Cl_2이다. 화학반응식을 $\sum\nu_i''A_i=0$의 형태로 표시했을 때 A_i는 화학성분이고 ν_i''는 화학량계수로서 생성물일 때 양수이며 반응물일 때 음수이다.

SiO_2는 입자이므로 확산보다는 열영동력의 영향이 매우 크므로 확산효과를 무시하였다.

$$\rho\frac{\partial Y_{SiO_2}}{\partial t}+\rho(\vec{V}+\vec{V_T})\cdot\nabla Y_{SiO_2}$$
$$=\nu_{SiO_2}''\frac{M_{SiO_2}}{M_{SiCl_4}}r_{SiCl_4} \tag{6}$$

2.2 경계조건

기체의 유입구에서의 경계조건은 다음과 같다.

$$0<r\leq R_i$$
$$u=2V_0(1-[r/R_i]^2)\quad v=0\quad T=T_0$$
$$Y_{SiCl_4}=Y_{SiCl_4,0}\quad Y_{O_2}=1-Y_{SiCl_4,0}$$
$$Y_{SiO_2}=Y_{Cl_2}=0$$
$$R_i<r\leq R_0$$
$$u=v=0\quad \partial T/\partial x=0$$
$$Y_{SiCl_4}=Y_{O_2}=Y_{SiO_2}=Y_{Cl_2}=0 \tag{7}$$

기체의 출구에서는 2차미분이 영인 조건을 사용하였다.

$$\partial^2(u,\ v,\ T,\ Y_{SiCl_4},\ Y_{O_2},\ Y_{SiO_2},\ Y_{Cl_2})/\partial x^2=0 \tag{8}$$

지배방정식은 축대칭을 가정하였으므로 원관의 중심에서 각 변수들의 영이 일차미분이 되도록하였다.

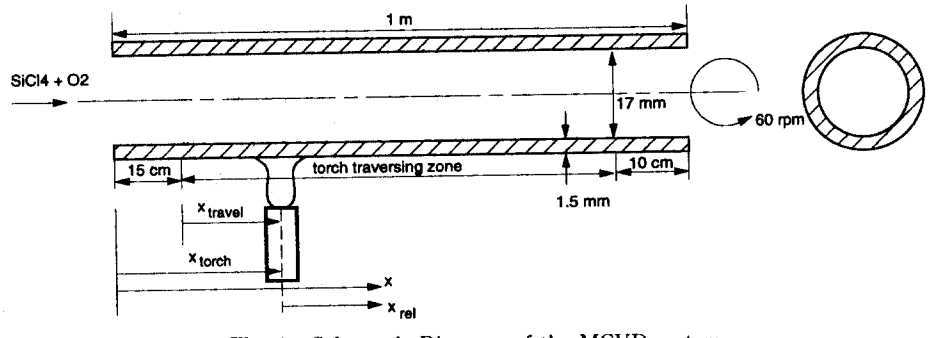

Fig. 1 Schematic Diagram of the MCVD system

$$\partial(u, v, T, Y_{SiCl_4}, Y_{O_2}, Y_{SiO_2}, Y_{Cl_2})/\partial r=0 \quad (9)$$

원관의 내부표면에서 속도는 영이고, 화학종들은 SiO_2만을 제외하고는 부착되지 않는다고 가정하였다. 그리고 온도와 열유속의 연속조건을 사용하였다.

$$u=v=Y_{SiO_2}=0$$
$$\partial(Y_{SiCl_4}, Y_{O_2}, Y_{Cl_2})/\partial r=0 \quad (10)$$

외부원관 표면에서는 토치의 열유속이 가우스함수 형태로 주어지며, 이 열은 원관으로의 열전도와 외부유체로의 대류 그리고 외부로의 복사에 의해 소산된다고 가정하였다.[8,11]

$$q_{max}\exp(-\lambda^2[x-x_{torch}]^2)$$
$$=k\partial T/\partial r+h(T-T_\infty)+\varepsilon\sigma(T^4-T_\infty^4) \quad (11)$$

2.3 물성치, 증착두께, 효율의 계산

온도에 따라 변화하는 대류열전달계수 h는 Farouk와 Ball[15]에서 구하였다. 온도에 따라 변화하는 방사계수 ε는 실리카 원관의 성질을 4.5μm 파장 이하에서는 투명하며 4.5μm 이상의 파장에서는 흑체라고 보는 단순화된 band 근사를 이용하여 구하였다.[16,17]

$$\varepsilon=2\pi C_1\int_{4.5\mu m}^{\infty}d\lambda/[\sigma T^4\lambda^5(e^{C_2/\lambda T}-1)] \quad (12)$$

고체에서는 온도가 상승할수록 순수한 열전도보다 복사열전달의 영향이 점점 더 커지게 되므로, 순수한 전도와 복사에 의한 열전도의 영향들을 함께 고려하였다. 복사에 의한 열전달을 고려하기 위하여 Rosseland의 확산근사[16]를 사용하였다.

$$k=k_{conduction}+k_{radiation}$$
$$=k_{conduction}+16n^2\sigma T^3/3\alpha \quad (13)$$

여기에서 Rosseland 확산계수(α)는 4cm^{-1}, 굴절률(n)은 1.5를 사용하였다.[18,19] 밀도는 화학종의 질량분율로부터 구한다.

$$Q=(Q_{O2}p_{O2}M_{O2}/\bar{R}T+\dot{m}_{SiCl4})/\rho \quad (14)$$
$$\rho=p/(\bar{R}T\sum_{i\ species}Y_i/M_i) \quad (15)$$

각 기체에서와 혼합기체에서의 점성계수, 열전도도, 확산계수 등은 실험값이 알려져 있는 경우 실험값을 내삽하여 사용하였으며,[20,21] 실험값이 없는 경우 운동역학을 이용한 다음과 같은 식으로 부터 구하였다.[22,23]

$$\mu=5\sqrt{\pi mk_BT}/16(\pi\sigma^2)\Omega_\mu \quad (16)$$
$$k=15\bar{R}\mu[1+4(\bar{C}_p/\bar{R}-5/2)/15]/4M \quad (17)$$
$$\mu_{mix}\approx\sum_{i\ species}M_i^{1/2}X_i\mu_i/\sum_{i\ species}M_i^{1/2}\mu_i \quad (18)$$
$$k_{mix}\approx\sum_{i\ species}M_i^{1/3}X_ik_i/\sum_{i\ species}M_i^{1/3}k_i \quad (19)$$

여기에서 Ω_μ와 σ는 삼중점에서의 열역학변수를 이용한 근사식[22,23]을 사용하여 다음과 같이 구하였다. 사염화규소의 경우 T_c는 508.15K, p_c는 3.593 MPa이다.

$$\Omega_\mu=1.22(k_BT/\varepsilon)^{-0.16} \quad (20)$$
$$\sigma=2.44(T_c/p_c)^{1/3} \quad (21)$$
$$\varepsilon/k_B=0.77T_c \quad (22)$$

사염화규소의 반응열은 JANAF table로부터 구하였다.[24]

증착두께는 원관내부표면으로의 질량플럭스로부터 구하였는데, 증착된 실리카층은 소결되어 다공성도가 영이라고 가정하였다.

$$\delta(x, t)$$
$$=\int_0^t[-\rho Y_{SiO_2}K\nu\partial\ln T/\partial r]_{r=Ri}d\tilde{t}/\rho_{quartz} \quad (23)$$

증착효율은 유입되는 $SiCl_4$의 몰수와 원관내부에 부착되는 SiO_2의 몰수의 비율로서 구한다.

$$E_D(t)=2M_{SiCl_4}\int_0^L\int_0^t[-\rho Y_{SiO_2}K\nu\partial\ln T/\partial r]_{r=Ri}d\tilde{t}\ dx/\rho_0Y_0V_0R_0tM_{SiO_2} \quad (24)$$

2.4 수치해석방법

2.2에서 나타낸 지배방정식을 제어체적에 대하여 적분을 한 후, 이 방정식을 이산화한다. 제어체적 면에서의 유속조건은 멱승법칙에 의하여 내삽을 하게 된다.[25] 연속방정식에서 유도되는 압력방정식을 풀기위해서 SIMPLE 방법이 이용되었으며, 수렴속도를 증가시키기 위해서 총체적 압력수정식(Bulk Pressure Correction)을 이용하였다.[26] 지배방정식은 비선형방정식이기 때문에 반복계산에 의하여 수렴해를 얻어야 하는데, 본 연구에서는 CGS[27]와 MCGS 풀이법[28]을 병용하여 사용하였으며 ADI 방법보다 빠른 수렴속도를 얻을 수 있었다. 격자도 검사(Grid Sensitivity Test)를 수행하였는데, 축방향으로 최소 0.5mm에서 최대 2.5mm까지 불균일하게 나누고 반경방향은 0.5mm의 등

간격으로 나눈 경우와 축방향으로 최소 1mm에서 최대 5mm까지 불균일하게 나누고 반경방향으로 0.7mm 간격으로 나눈 경우의 증착두께를 비교해 본 결과 두 경우가 0.1% 이내로 일치함을 알았다. 시간이 진행함에 따라 그리드를 다시 생성하여 화학반응구간에서 조밀한 그리드를 사용할 수 있게 하였다. 시간간격에 대한 검사를 수행하여 1/3초를 최종계산에 사용하였으며, 주어진 방정식의 이산화된 식에서 잔류치(residual)의 총합의 무차원화된 값이 0.001 이하가 될 때 수렴한다고 가정하였다.

3. 결과 및 토의

수치해석의 타당성을 검증하기 위하여 기존의 실험결과와 비교해 보았다. 본 해석의 조건들은 Cho와 Choi[12]의 실험에 쓰인 조건과 동일하게 일치시켰다. Carrier gas인 O_2의 유량은 2l/min이고 버블링되는 $SiCl_4$의 질량은 3.91g/min로서 $SiCl_4$의 질량분율은 0.6이다.

Fig. 2는 전술한 조건하에서 계산을 수행한 결과로서, 토치가 전진함에 따라 특정한 시간에서의 전 원관의 온도분포를 보여주고 있다. Cho와 Choi[12]는 토치의 열유속을 고정시키고 토치 속도를 일정하게 유지시키면서 실험을 수행하였는데, 이 조건으로 계산한 결과인 Fig. 2를 보면, 토치 이송의 시작부위에서는 토치의 열유속을 받는 시간과 면적이 상대적으로 작으므로 이송이 어느 정도 진행된 후보다 최고온도가 낮다. 실선으로 표시된 것은 첫번째 이송인 경우의 온도분포이고 점선으로 표시된 것이 두번째 이송의 온도분포를 나타낸 것인데, 두번째 이송의 경우를 보면 첫번째 이송시의 가열효과 때문에 출구쪽의 온도가 첫번째 이송시의 경우보다 상당히 올라감을 보여주고 있다. 이러한 전번 토치 이송시의 토치 가열효과는 Park과 Choi[11]가 two-torch 모델로서 예측했었으며, Cho와 Choi[12]도 실험적으로 밝혔던 점이다.

Fig. 3은 원관의 주어진 지점에서 토치가 이송되면서 변화하는 원관온도를 토치위치와의 상대거리에 따라 나타낸 그림으로, 여러 지점에서 온도변천(Temperature History)이 토치와의 상대거리로 나타내었을 때 겹쳐지는 결과를 보여주고 있다. Walker 등[3]과 Cho와 Choi[12]가 제시한 실험적 온도분포는 Fig. 3에서 도시한 바와 같이 나타낸 것으로서 원관의 어떤 지점에서의 시간에 따른 온도측정을 토치와의 상대거리에 따라 나타낸 것이다. Fig. 3에서는 원관의 어느 위치에서도 온도의 시간에 따른 변화가 닮음꼴을 하므로, 공간적으로도 닮음꼴을 하리라는 판단을 하기 쉽다. 이러한 판단으로 지금까지의 모델링 연구에서는 준정상상태를 가정하였고, 원관벽면 온도조건으로 위에서 기술한 방법으로 측정한 값들을 이용하고 있다. 그러나, 이러한 측정값이 주어진 시간의 전원관의 온도분포를 나타낸다고 가정하기 위하여서는 토치 기준좌표계에서 원관의 온도분포가 모두 일치하리라는 가정 즉 준정상상태의 가정이 성립하여야 한다. 이러한 준정상상태의 가정을 검증하기 위하여 토치 기준좌표계에 대하여 주어진 시간에 원관표면의 공간적인 온도분포를 나타낸 그림이 Fig. 4이다. Fig. 4에서 x_{travel}은 토치가 토치 이송시작점으로부터 이송한 거리(토치의 절대위치, x_{torch}, 와 토치 이송시작점, x_{start}=15cm, 의 차)를 나타내는데 토치 속도로 나누어 주면 경과된 시간이 된다. 즉 x_{travel}=5cm일 때 토치 속도가 20cm/min인 경우 t=15초를 나타낸다. Fig. 4의 분포는 주어진 시간에 원관전체의

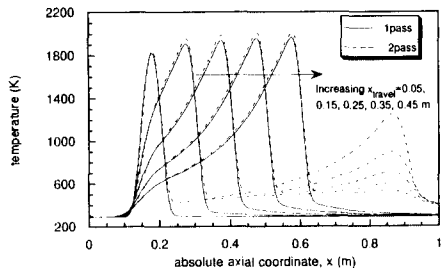

Fig. 2 Distributions of tube wall temperature in the absolute axial coordinate for different torch loactions(different times)

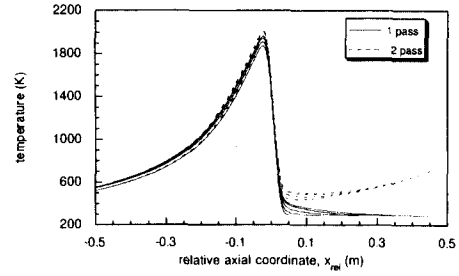

Fig. 3 Temporal variations of tube wall temperature at fixed points shown in the relative(moving) coordinate

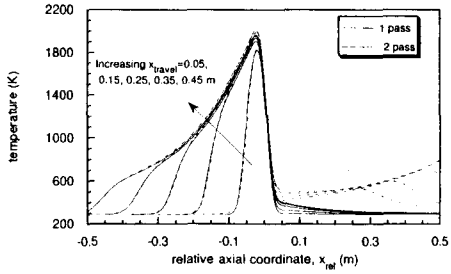

Fig. 4 Distributions of tube wall temperature in the relative axial coordinate for different torch locations (different times)

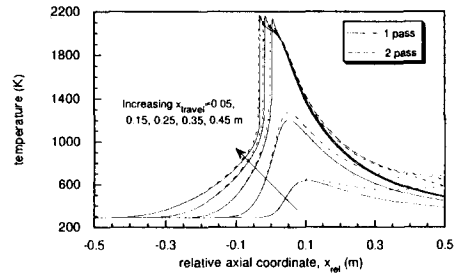

Fig. 5 Distributions of tube center temperature in the relative axial coordinate for different torch locations (different times)

온도분포를 나타낸 그림인데, 만약 다른 토치의 위치(x_{travel})에서도 상대좌표계(x_{rel})를 기준으로 했을 때 공간적인 온도분포가 한 곡선에 겹쳐진다면, 온도분포는 토치 기준좌표계에서 준 정상상태에 있다고 말할 수 있다. Fig. 4를 보면 Fig. 3에서와는 달리 토치 후방부분(토치 이송시작부위)에서 토치와의 상대거리로 나타낸 좌표계라도 온도분포에 큰 차이를 보임을 알 수 있다. 그 이유는 원관 입구부분에는 토치의 열유속을 제대로 전달받지 못하므로, 토치가 무한히 긴 원관을 가열하면서 전진하고 있다는 준정상상태의 가정과 상충되기 때문이다. 그러나 토치가 20cm 이상 전진하면 토치 후방의 표면온도가 어느정도 한 곡선에 겹쳐짐을 볼 수 있으므로, 이 정도의 토치 위치에서 부터는 준정상상태의 가정이 타당하다고 할 수 있다. Fig. 5는 토치 기준좌표계에서 원관 중심축의 기체온도의 공간적인 분포를 나타낸 것인데, 기체가 낮은 온도로 유입되므로 원관표면에서 열량을 받아 표면온도에 상응하는 온도가 되기위해서는 어느 정도의 시간이 필요하게 됨을 알 수 있고, 따라서 원관입구 영역에서는 준정상상태의 가정이 크게 위배됨을 알 수 있다. 그러므로, 토치가 축방향으로 상당히 진행한 이후에라야 원관중심부분의 기체온도장이 준정상상태가 될 수 있을 것이다. 기존의 준정상상태의 모델링은 전체의 개략적인 효율을 예측하는데는 훌륭하게 사용될 수 있지만[3,11] 구체적인 증착모양을 예측하는 데에는 한계가 있음을 알 수 있다. 준정상상태와 비정상상태에서의 증착두께 계산결과의 비교는 Fig. 7에서 논의될 것이다.

Fig. 6은 비정상상태해석의 수치해를 검증하기 위하여, 실험과 준정상상태해석의 결과들과 비교해 본것이다. 수치해의 표현 방법으로 실험측정시와

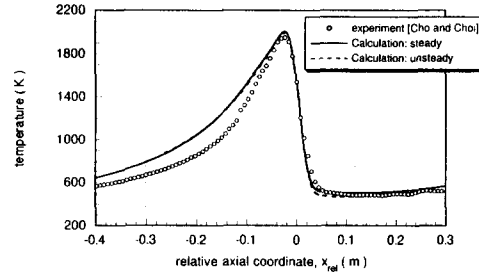

Fig. 6 Temporal variations of tube wall temperature at x=0.25m shown in the relative (moving) coordinate

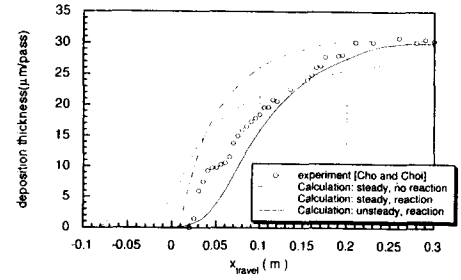

Fig. 7 Comparisons of deposition thickness variation in the axial direction (circle : experiment [Cho and Choi], lines : calculation)

동일한 방법 즉, 주어진 지점에서 시간에 따라 변화하는 원관벽의 온도를 토치 기준좌표계에서 나타내면, 토치 후방에서의 차이를 제외하면 정상상태 해석결과 및 실험결과와 잘 일치하고 있다. 토치 전방의 최소온도를 거의 정확하게 예측하고 있다는 사실은, Walker 등[3]이 실험식으로 제시한 식에서 충분한 반응이 일어나는 경우 전체효율은 단지 최소온도의 함수라는 사실에 주목한다면, 준정상상태나 비정상상태의 해석이 유용하게 사용될 수 있음

을 알 수 있다. 그러나 원관벽의 온도(x=0.25m)가 일치한다고 해서 준정상상태의 가정이 타당하다는 것을 검증하는 것이 아님을 Fig. 4와 5에서 보인 바 있다. 즉 주어진 시간에 온도의 공간적인 분포가 닮음꼴을 하여야 준정상상태가 되기 때문에, 원관의 중심부분까지를 포함하다면 원관입구 영역뿐 아니라 입구에서 상당히 먼 거리까지 준정상상태의 가정은 타당하지 않다.

Fig. 7에서는 비정상상태해석으로 구한 입자부착두께의 축방향변이를 실험측정값과 준정상상태의 해석결과와 비교하였다. 정상상태해석에서는 화학종방정식을 해석하여 물질의 확산과 화학반응을 고려한 경우와 화학종방정식을 해석하지 않고 유동 및 온도장해석만을 고려하는 두 가지 경우에 대하여 해석을 수행하였다. 열영동계수를 본 실험의 기체조성에서 계산해 본 결과, 입자직경이 0.1μm 이하인 경우 300K에서 0.52 정도이고 1000K 이상에서는 0.55에 접근하는 것으로 봐서, Talbot 등[29]이 제시한 0.55가 타당한 것으로 생각된다. 따라서 열영동계수로는 0.55를 사용하였다. 단, 물질의 확산과 화학반응을 고려하지 않는 경우에는 열영동계수로 Walker 등[3]이 사용한 0.9를 사용하였는데, 이는 $SiCl_4$의 벽면으로의 확산의 영향과 반응열을 보정해 주기 위함이다. 이러한 보정의 타당성을 알아보기 위하여, K값으로 0.9를 사용하고 물질의 확산과 화학반응을 고려하지 않았을 경우의 수치해석결과를 Walker 등[3]의 실험과 Cho와 Choi[12]의 실험결과들과 비교해 보았는데, 전체효율을 상당히 잘 예측하고 있었다. 준정상상태 해석 중 물질의 확산과 화학반응을 고려한 경우 토치 이송이전에 증착이 이루어지는 특이한 결과가 나타나는데, 그 이유는 준정상모델로는 토치가 상당히 진행한 다음의 증착모양 밖에는 모사할 수 없는데도, 이 증착모양을 토치 이송초기에서의 증착모양으로 간주함으로써 발생하는 오류이다. 준정상상태를 가정한 Joh 등[13]은 $SiCl_4$의 질량분율이 큰 경우에는 반응하는 양이 많기 때문에 토치 위치 후방에서 급격한 반응이 이루어져서 입자가 발생하는데, 이곳에서는 벽면온도가 토치전방보다 높으므로 $SiCl_4$의 질량분율이 작은 경우보다 입자부착력이 작아져서 낮은 효율을 나타낸다고 보고하였다. 본 연구에서도 $SiCl_4$의 질량분율이 급격한 반응(spike)을 일으키기에 충분하므로 토치 후방에서 증착이 이루어지고 화학반응을 고려하지 않는 경우보다 전체효율이 낮게 나타남을 Fig. 7에서 알 수 있다(점선참조). 물질의 확산과 화학반응을 고려하지 않는 경우에는 급격한 반응이 발생하지 않기 때문에 토치 위치 이전에서 증착이 이루어질 수 없다. 토치 이송초기에는 화학반응량이 작기 때문에(Fig. 5를 보면 내부기체의 온도가 토치 이송초기에 상대적으로 낮음을 알 수 있다.) 준정상상태모델에서는 화학반응을 고려하지 않는 것이 입자부착의 초기모양을 실험결과와 더 근접하게 예측할 수 있다. 그러나 비정상상태모델은 토치 이송초기의 미미한 화학반응과 그 이후의 급격한 화학반응을 모두 고려할 수 있으므로 정상상태모델에 비해 더 나은 결과를 보여준다. (실선참조)

본 연구의 비정상해석에서는 토치 속도가 시간에 따라 변화하는 경우의 열전달과 입자부착을 해석할 수 있는데, Fig. 8에 나타낸 세 가지 다른 토치 속도의 변화에 대한 영향을 검토하였다. 일정하게 유지되는 토치 속도를 20cm/min로 하였고, 이를 기준으로 토치 이송 시작시 30초간 정지시키는 경우 그리고 120초까지 선형적으로 토치 속도를 변화시키는 경우를 해석하였다. Fig. 9는 토치 이송속도

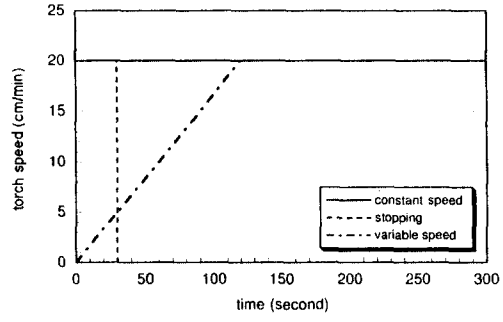

Fig. 8 Variations of torch speed considered in the study

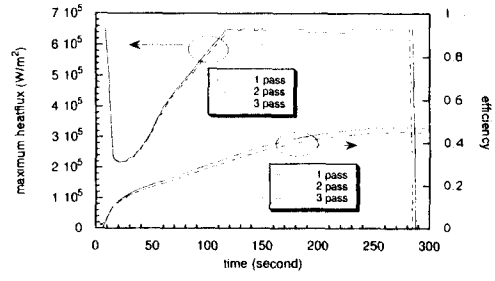

Fig. 9 Temporal variations of maximum heat flux and efficiency for variable torch speed case

를 선형적으로 변화시키는 경우, 원관벽의 최고온도를 일정하게 유지시키기 위해 필요한 토치의 열유속과 입자부착효율의 변화를 나타낸 것이다. 토치 이송초기에는 토치 속도가 느리기 때문에 토치 열유속을 조절하지 않으면 벽면의 최고온도가 너무 상승하게 된다. 따라서 토치 벽면온도를 일정한 값으로 유지시켜주어야 하는데, 그림에서와 같이 토치 이송 초기에 열유속이 줄어들었다가 토치 속도가 증가함에 따라 열유속이 증가하는 모양을 보여주고 있다. 그러나, 최고온도를 일정하게 유지시키기 위해서 열유속을 한계 없이 조절해 줄 수 있는 것은 아니므로 최대열유속에 한계를 주었다. Cho와 Choi[12]의 실험에서도 밝혔듯이 2번째 이상의 이송시부터는 최대 열유속에도 일정한 주기성이 보여진다. 효율의 측면에서 보면 토치 이송초기에는 증가하다가 토치 이송후반기에는 증가가 둔화되거나 감소하는 모습을 보여주는데, 토치 이송초기에는 토치 후방의 온도가 낮기 때문에 화학반응이 충분히 일어나지 못하고 토치 이송이 진행됨에 따라 토치 후방의 온도의 증가에 따라 화학반응량이 많아지며 토치가 더욱 진행함에 따라 토치위치 이전의 급격한 반응(spike)의 결과로서 토치위치 이전에 증착이 이루어짐으로써 입자부착력이 감소하기 때문이다.

Fig. 10와 11은 토치 속도가 진행됨에 따라 토치 속도를 변화시켜주는 경우와 일정하게 유지시켜주는 경우의 벽면온도분포와 중심축 온도분포를 비교한 그림이다. 그림을 보면 토치가열 주위의 온도는 토치 속도의 변화에 큰 영향을 받지 않으나 원관의 출구부의 온도는 토치 속도를 변속시켜주는 경우가 낮음을 알 수 있는데, 토치 변속의 경우가 일정 토치 속도의 경우보다 한번 왕복하는데 걸리는 시간이 길기 때문이다. 따라서 급격한 반응(spike)이 일어나더라도 토치 전방의 최저온도가 낮아지므로 효율이 급격히 감소하지 않는 경향을 보여준다. Fig. 8의 효율곡선에서 시간이 진행함에 따라 효율의 증가량이 둔화되나 크게 낮아지지는 않는 것은 이 이유 때문이다.

Fig. 12는 토치가 전진함에 따른 입자부착모양을 나타낸 것인데, 토치 이송초기에 입자의 반응이 작아 단위시간 당 증착량이 작지만 그곳에서 토치 이송을 느리게 할 경우 단위면적 당 증착량을 늘일 수 있기 때문에 일정한 증착두께를 얻을 수 있다. 이렇게 토치 이송초기에 토치 속도를 감속함으로서

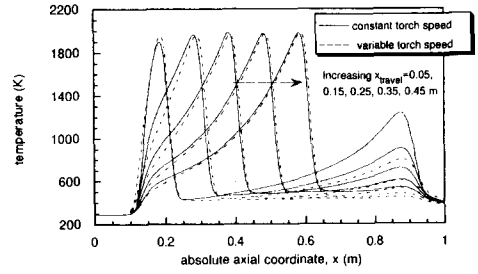

Fig. 10 Distributions of tube wall temperature in the absolute axial coordinate for the different torch locations (different times)

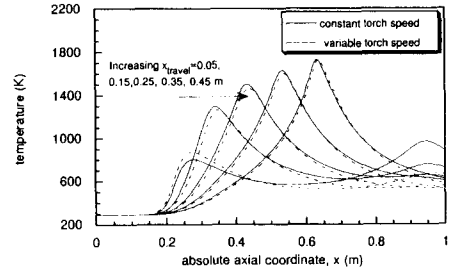

Fig. 11 Distributions of tube wall temperature in the absolute axial coordinate for different torch locations (different times)

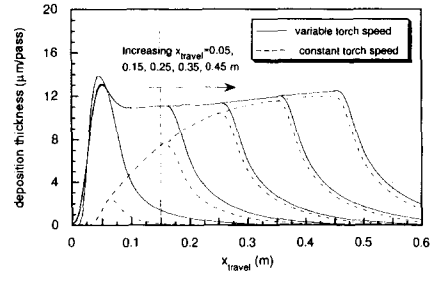

Fig. 12 Comparison of deposition thickness variation in the axial direction for different torch speed variations

불균일 부착길이를 30cm 정도에서 10cm 정도까지 단축했음을 알 수 있다.

Fig. 13은 토치 속도의 변화에 따라 입자부착두께가 어떻게 변화하는지 조사해본 것인데, 토치 이송시작점에서부터 얼마간 선형적으로 토치 속도를 변화시키는 경우가 토치 이송시작점에서 일시적으로 정지시킨 경우나 토치 속도를 일정하게 유지시키는 경우보다 훨씬 나은 방법임을 알 수 있다. 토치 정지만을 시킬 경우 토치 이송 시작점근처만 입

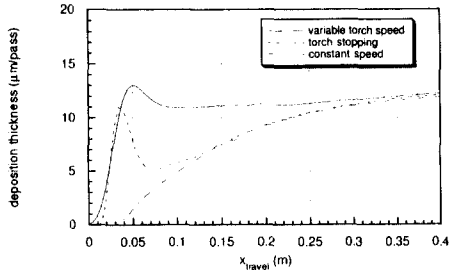

Fig. 13 Effect of torch speed on deposition thickness variation in axial direction

자부착량이 늘어나므로 전체적인 입자부착의 불균일도를 시정하는 데에는 효율적인 방법이 아닌 것으로 보인다. 본 해석의 토치 변속의 경우에도 토치 이송시작점 근처에서 약간의 볼록한 증착형상을 보이는데, 토치 변속을 간단한 선형함수형태로 주었기 때문일 것이다. 축방향으로의 균일한 부착을 얻기 위한 토치 속도의 결정에 비정상해석이 유용하게 사용될 수 있음을 알 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 MCVD 방법에서의 비정상 열 및 물질전달 해석을 수행하였는데, 비정상상태의 해석이 온도장과 입자부착층의 변화를 보다 정확히 예측할 수 있었다. 비정상해석을 통해 토치 변속이 입자부착층의 모양에 미치는 영향을 알아보았다. 수치해석을 검증하기 위하여 벽면온도분포와 증착두께에 대한 실험결과를 수치해석결과와 비교하였는데 일치하였다. 원관입구영역에서는 기존에 사용되어 오던 준정상상태의 가정이 위배되며, 내부기체의 온도는 벽면온도보다 더 늦게 준정상상태에 도달함을 알 수 있었다. 준정상상태의 해석은 대략적인 증착효율의 예측에는 사용될 수 있지만 구체적인 증착모양을 예측하는 데는 한계가 있음을 밝혔다. 비정상해석을 수행한 결과 증착모양을 잘 예측함을 파악하였다.

토치속도가 변화하는 경우 열전달과 입자부착에 미치는 영향을 알아보기 위하여, 토치 속도를 일정하게 유지시키는 경우, 토치 이송시작점에서 얼마간 정지한 경우, 토치 시작점에서 얼마간 선형적으로 변화시키는 경우 등 세 가지 다른 토치 속도의 변화에 대하여 연구를 수행하였다. 연구결과 토치 속도가 일정하게 유지되는 경우에 비해 토치 속도를 선형적으로 변화시키는 경우가 불균일 부착길이를 크게 줄일 수 있음을 알았다. 토치 이송시작점에서 얼마간 정지하는 경우에는 불균일 부착길이에 큰 변화가 없었다.

후 기

이 연구의 일부는 교육부 기계공학연구(ME95-A-03)의 지원으로 이루어졌음을 밝히며 이에 감사드립니다.

참고문헌

(1) MacChesney, J. B., O'Connor P. B. and Presby, H. M., 1974, "A New Technique for Preparation of Low Loss and Graded Index Optical Fibers," *Proc. IEEE* 62, 1278~1279.

(2) Simpkins, P. G., Kosinski S. G. and MacChesney, J. B., 1979, "Thermophoresis : the Mass Transfer Mechanism in MCVD," *J. Appl. Phys.* 50, 5676~5681.

(3) Walker, K. L., Geyling F. T. and Nagel, S. R., 1980, "Thermophoresis Deposition of Small Particles in the Modified Chemical Vapor Deposition(MCVD) Process," *J. Am. Ceram. Soc.*, 63, 552~558.

(4) Wang, C. W., Morse T. F. and Cippola, J. W., Jr, 1985, "Laser Induced Natural Convection and Thermophoresis," *ASME J. Heat Transfer*, 107, 161-167.

(5) Morse, T. F., DiGiovanni, D., Chen Y. W. and Cippola, J. W., Jr, 1986, "Laser Enhancement of Thermophoretic Deposition Process," *J. Lightwave Technol.*, LT-4(2), 151~155.

(6) Kim, K. S. and Pratsinis, S. E., 1988, "Manufacture of Optical Waveguide Preforms by MCVD," *A. I. Ch. E. J.*, 34, 912~920.

(7) Fiebig, M., Hilgenstock, M. and Rieman, H. A., 1988, "The Modified Chemical Vapor Deposition Process in a Concentric Annulus," *Aerosol Sci. Technol.*, 9, 237~249.

(8) 최만수, 박경순, 1994, "환상형원관을 사용하는 수정된 화학증착(MCVD)방법에서 내부제트분사가 입자부착에 미치는 영향," 대한기계학회

논문집, 18(1), 212~222.

(9) Choi, M., Lin, Y. T. and Greif, R., 1990, "Analysis of Buoyancy and Tube Rotation Relative to MCVD Process," *ASME J. Heat Transfer*, 112, 1063~1069.

(10) Lin, Y. T., Choi, M. and Greif, R., 1992, "A Three Dimensional Anaysis of Particle Deposition for the Modified Chemical Vapor Deposition (MCVD) Process," *ASME J. Heat Transfer*, 114(3), 735~742.

(11) Park K. S. and Choi, M. , 1994, "Conjugate Heat Transfer and Particle Deposition in the Modified Chemical Vapor Deposition Process : Effect of Torch Speed and Solid Layer," *Int. J. Heat Mass Transfer*, 37(11), 1593~1603.

(12) Cho, J. and Choi, M., 1995, "An Experimental Study of Heat Transfer and Particle Deposition for the Modified Chemical Vapor Deposition," *ASME J. Heat Transfer*, 117(4), 1036~1041.

(13) Joh, S., Grief, R. and Lin, Y. T., 1993, "A Study of the Effects of Chemical on the Modified Chemical Vapor Deposition (MCVD) Process," *J. Mater. Process. Manuf. Sci.*, 1, 369~386.

(14) French, W. G., Pace, L. J. and Foertmeyer, V. A., 1978, "Chemical Kinetics of the Reations of SiCl4, GeCl4, POCl3 and BCl3 with Oxygen," *J. Phys. Chem.*, 82(20), 2191~2194.

(15) Farouk, B. and Ball, K. S., 1985, "Convective Flow around a Rotating Isothermal Cylinder," *Int. J. Heat Mass Transfer*, 28(10), 1921~1935.

(16) Siegel, R. and Howell, J. R., 1992, *Thermal Radiation Heat Transfer*, 3rd Ed., Hemisphere Pub. Co.

(17) 손정욱, "급속 고온 처리장치에서의 복사 열전달 연구," 공학석사학위논문, 서울대학교 (1992)

(18) Homsy, G. M. and Walker, K. L., 1979, "Heat Transfer in Laser Drawing of Optical Fibers," *Glass Technol.*, 20(1), 20~26.

(19) Paek, U. C. and Runk, R. B., 1978, "Physical Behavior of the Neck-down Region during Furnace Drawing Silica Fibers," *J. Appl. Phys.*, 49(8), 4417~4423.

(20) Weast, R. C. and Arstle, M. J., 1981, CRC Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press Inc., 61st Ed.

(21) Irvine, T. F. and Liely, P. E., Jr., 1984, *Steam and Gas Tables with Computer Equations*, Academic Press., 161~165.

(22) Rosner, D. E., 1986, *Transport Process in Chemically Reacting Flow Systems*, Butterworth.

(23) Bird, R. B., Stewart, W. E. and Lightfoot, E. N., 1960, *Transport Phenomena*, John Wiley & Sons, Inc.

(24) Chase, M. W., Jr., Davies, C. A., Downey, J. R., Jr., Frurip, D. J., McDonald, R. A. and Syverud, A. N., *JANAF Themochemical Tables*, Americal Institute of Physics Inc.

(25) Patankar, S. V., 1980, *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*, Hemishere Pub. Co.

(26) Lavine, A. G., 1984, "A Three-Dimensional Analysis of Natural Convection in A Toroidal Roop," Ph. D. Thesis, University of California, Berkeley.

(27) Kershaw, D. S., 1978, "The Incomplete Cholesky-Conjugate Gradient Method for the Interative Solution of Systems of Linear Equations," *J. Comp. Phys.*, 26, 43~65.

(28) Kim, C. and Ro, S. T., 1995, "Efficient and Robust Matrix Solver for the Pressure-Corrections in Flow Problems," *Numerical Heat Transfer*, Part(B), 355~369.

(29) Talbot, L., Cheng, R. K., Schefer, R. W. and Willis, D. R., 1980, "Thermophoresis of Particles in a Heated Boundary Layer," *J. Fluid Mech.*, 101, 737~758.