

전기수력학적 분무에서 노즐재질이 입경분포에 미치는 영향

김 명 찬* · 이 상 용†

(2002년 4월 20일 접수, 2002년 7월 25일 심사완료)

Effect of Nozzle Material on Drop Size Distribution in Electrohydrodynamic Spraying

Myoung Chan Kim and Sang Yong Lee

Key Words : Uniform Droplets(균일 액적), Electrohydrodynamic Spray(전기수력학적 분무), Spindle Mode(스핀들 모드), Surface Wettability(표면 젖음도), Electric Field(전기장)

Abstract

When an aqueous liquid such as water having high electric conductivity and high surface tension is discharged from a nozzle under a strong DC electric field, fine drops ranging from 30 to 450 microns can be obtained only through the spindle mode. In the present study, effects of the electric conductivity and the surface wettability of nozzle materials on formation of drops with this mode were investigated. For that, three nozzles with the same size but with different materials were prepared and tested; a stainless steel needle, and a plain and a metal (gold)-coated (except for the tip portion) silica needles. Uniform drops were obtained with the gold-coated silica nozzle over the wider range of the DC voltage input. That is, formation of the liquid cone and detachment of the liquid spindle (ligament) can be more stabilized and frequent with the needles having high electric conductivity but with low surface wettability at their tips.

기호설명

DC : direct current
F : force

그리스문자
 θ : angle

하첨자
C : conducting
N : nonconducting

1. 서론

전기수력학적 미립화 방법은 적은 공급유량으로 미세하고 균일한 액적을 만들어야 하는 액체 급속

분무, (1) 잉크젯 프린터, (2) 콜로이드 생성, (3) 파우더 제조, (4,5) 필름 생성(6,7) 등에 넓게 적용 될 수 있다. 또한, 균일 액적의 생성은 액체의 운동, 증발, 건조, 연소 등의 연구에 필수적이다.

물은 그 자체로서, 또는 다른 물질을 녹여 수용성 액체 상태로 많이 이용된다. 그러나 수용성 액체는 높은 표면장력과 전기전도도를 가지기 때문에 작은 입경의 균일 액적을 얻을 수 있다고 알려진 콘 제트(cone jet) 모드와 마이크로 드리핑(microdripping) 모드가 나타나지 않는다. 따라서, 이 두 모드를 제외할 경우 스핀들 모드는 30-450 마이크로론의 작은 액적을 얻을 수 있는 유일한 모드로 알려져 있다. 그리고 30-450 마이크로론 입경을 가지는 액적들은 대부분의 미립화 분야에 응용된다. 따라서, 이러한 입경 영역에서 균일 액적의 생성은 실제적 응용을 위해 매우 중요하다. 그럼에도 불구하고 스핀들(spindle) 모드로부터 얻어진 액적들이 콘 제트 또는 마이크로 드리핑 모드의 경우에 비하여 상대적으로 균일하지 않다는 이유로 지금까지는 현상의 관찰 이외에는 별다른 연구

* 한국과학기술원 기계공학과
† 책임저자, 회원, 한국과학기술원 기계공학과
E-mail : e_hyunny@cais.kaist.ac.kr
TEL : (042)869-3026 FAX : (042)869-8207

가 이루어져 있지 않다. 김명찬 등⁽⁸⁾은 스테인리스 스틸(STS) 재질의 노즐과 실리카(silica) 재질의 노즐을 사용한 경우에 평균입경 및 입경분포를 비교하였다. 그리고, 실리카 노즐의 경우에 스펀들 모드가 시작되는 입력전압에서 균일한 액적을 얻을 수 있지만, 입력전압이 증가함에 따라 평균 입경이 단조 증가함을 보고하였다. 그 이유를 살펴보기 위하여, 전도성 및 비전도성 노즐을 사용한 경우에 액체 체적이 받는 힘의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. 전도성 노즐을 사용한 경우(Fig. 1(a))에 액체 콘(cone)은 노즐 몸체에 의해 형성된 축대칭 전기장의 영향을 받으므로 노즐 중앙으로 가장 큰 힘을 받는다. 그리고 액체 콘이 중앙으로부터 어긋나더라도 중앙으로 오려는 복원력(restitution force)을 받는다. 이에 비해 비전도성 노즐의 경우(Fig. 1(b))에는, 액체 콘의 체적중심이 중앙을 벗어나 생성되면 전하의 양도 한쪽으로 편중된다. 이때 한쪽으로 편향된 액체 콘에 의해 발생된 전기장과 전하는 같은 쪽으로 치우치므로 점점 더 노즐 중앙으로부터 벗어나게 된다. 노즐 중앙으로부터 멀어지던 액체 콘은 직전에 액체 콘에서 떨어져 나온 액체 스펀들과의 반발력(액체 콘 및 액체 스펀들은 같은 극성으로 대전되어 있음)에 의해 액체 콘의 반대 방향으로 밀린다. 따라서, 비전도성 노즐을 사용한 경우에는 노즐 끝에 매달린 액체 체적이 계속해서 좌우로 흔들리게 된다. 여기서는 이 현상을 액체 체적의 “흔들림 현상(pivoting motion)”이라고 표현하도록 하겠다. 스펀들 모드에서 노즐 직경보다 작은 액적이 만들어질 수 있는 이유는 노즐 끝에 매달린 액적 체적이 콘 형태를 띠면서 콘 끝에 밀집된 전하에 의해 생

기는 전기력이 표면장력을 이기고 가느다란 스펀들을 만들어 내기 때문이다. 그러나, 흔들림 현상이 일어나면 노즐 끝에 액체 체적이 좌우로 움직이기 때문에 액체 콘의 정점이 받는 힘의 방향이 계속해서 변한다. 결국, 액체 체적은 뾰족한 콘의 형태를 만들기가 어렵게 되고 흔들림 현상이 일어나지 않는 경우에 비해 상대적으로 오랜 시간 동안 노즐 끝에 매달려 있으면서, 더 많은 유량과 전하가 유입된 이후에야 끝이 상대적으로 덜 뾰족한 액체 체적으로부터 액주를 만들어 낸다. 이 과정에서 액주가 가지는 액체의 양이 증가하므로 액주의 분열로 만들어진 액적의 크기도 커진다. 따라서, 액체 체적의 흔들림은 액적의 크기를 증가시킨다.

본 연구에서는 액체 체적의 흔들림 현상으로 인해 생기는 비전도성 노즐 사용 시의 단점을 보완하기 위해 실리카 노즐 표면을 전도성 물질인 금으로 도포(coating)했다. 또한, 노즐 끝에서 분사액체에 의한 표면의 젖음이 잘 일어나지 않는다는 실리카 재질(전기적으로 부도체이며 물에 의한 젖음이 일어나지 않는 소수성을 가짐)의 장점을 유지하기 위해⁽⁸⁾ 2 절에 설명한 바와 같이 노즐 끝 부분 0.5mm는 도포하지 않았다.

본 연구의 목적은 노즐의 재질(젖음도의 영향)⁽⁸⁾과 외부표면에 입힌 금속 도포 여부(전기장 형성의 영향)가 평균입경 및 입경 분포에 미치는 영향을 살펴보는 데 있다. 그리고 이를 통해 미세 균일 액적을 가장 잘 얻을 수 있는 조건을 찾는 것이다.

2. 실험 장치

본 연구에서 액적을 전기수력학적으로 미립화시키기 위해 사용한 실험장치는 Fig. 2와 같다. 이 실험 장치는 저자들의 기존 논문⁽⁸⁾의 실험장치와

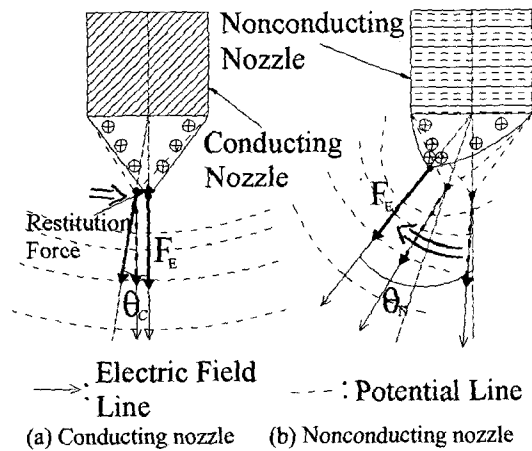


Fig. 1 Illustration of liquid cone motion at the tip of the nozzles with different electrical conductivities (Flow rate: 1.0×10^{-4} ml/s)

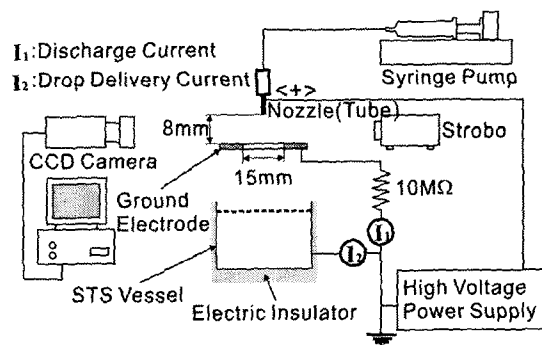


Fig. 2 Experimental setup for electrohydrodynamic spraying experiments

동일하다. 실험 장치는 노즐에 분사액체를 공급하는 액체 공급부와 노즐과 접지전극 간에 전압을 걸어주는 고전압 공급부, 그리고 측정 장비로 구성된다. 원하는 공급유량을 일정하게 공급하기 위해 주사기 펌프(syringe pump, Orion 305, $2.25 \times 10^{-5} - 1.29 \text{ ml/s}$)를 사용하였으며, 고전압 공급을 위해서는 최대 전압 30 kV 와 최대 전류 5 mA 를 갖는 DC 고전압 전원 공급기(DC high voltage supply, KSC Co.)를 연결한다. 노즐과 접지전극 사이에 걸리는 전압을 측정하기 위해 고전압 프루브(high voltage probe, Tektronix 6015A)를 사용한다. 노즐에 공급되는 고전압은 STS 재질의 노즐 몸체를 통해 고전압 공급기와 직접 연결되어 있다. 노즐과 접지전극 간의 스파크 발생시 과전류 방지를 위해 접지 전극(ground electrode)과 접지(earth) 사이에 10 MΩ의 저항을 연결한다. 접지전극과 노즐 사이의 축방향 거리는 8 mm 로 고정하였다. 공급 액체는 전기전도도가 $(1.00 \pm 0.04) \times 10^{-4} \text{ S/m}$ 인 초정수(ultra pure water)를 사용한다. 액체 분무의 순간상은 CCD 카메라(Toshiba, NB.1K537K)와 20 ns 이하의 선평 시간을 가지는 스트로보에 의해 얻어지고 컴퓨터에 저장되었다. 노즐과 접지전극 사이의 방전전류는 멀티미터(HP 3458A)를 사용해 측정했다. 입경 분포를 측정하기 위해서는 Kim 등⁽⁹⁾의 영상처리 알고리즘을 이용한 영상처리 기법이 사용되었다. 각 입경분포를 얻기 위해서 1000 개 이상의 액적들이 측정되었고, 측정 오차는 $\pm 10\%$ 이내다. 공급유량은 $1.0 \times 10^{-4} \text{ ml/s}$ 로 고정시켰고, 입력전압

의 변화 범위는 3.0–4.5kV 이다.

Fig. 3 은 실험에 사용된 3 가지 종류의 노즐들을 보여준다. 노즐 재질의 영향을 보기 위해서 STS 노즐과 실리카 노즐을 시험한다. STS 노즐(Fig. 3(a))의 외경 및 내경은 각각 0.30 mm, 0.13 mm 이고, 실리카 노즐(Fig. 3(b), (c))의 외경 및 내경은 각각 0.32 mm, 0.10 mm 이다. 두 개의 실리카 재질의 노즐들 중 하나(Fig. 3(c))는 노즐 표면을 금(gold) 도포하였다. 그러나, 고유 재질의 젖음 상태를 유지하기 위해 노즐 끝 부분 0.5mm 는 도포하지 않았다. 이와 같은 2 가지 종류의 실리카 노즐을 만든 이유는 끝단 젖음을 실리카로 하되 노즐 외부의 전기 전도성 영향을 보기 위함이다.

3. 결과 및 논의

3.1 액체 체적의 흔들림 현상(pivoting motion)

Fig. 4 에서는 각 노즐 재질에 따른 노즐 끝단 액체의 거동을 보여 주고 있다. Fig. 4(a)는 STS 노즐의 경우에 액주가 중앙으로 성장하는 모습을 보여준다. 그리고, Fig. 4(b)는 실리카 노즐의 경우에 액체 체적의 좌우 흔들림 현상을, Fig. 4(c)는 비전도성인 실리카 노즐에 금으로 도포한 이후 액체 체

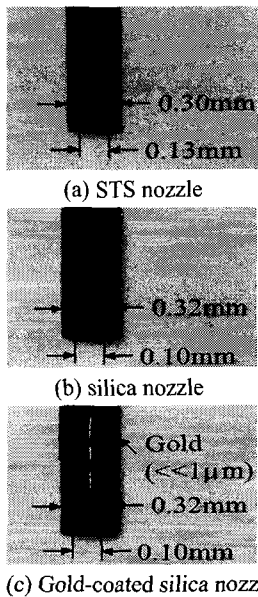


Fig. 3 Configuration and size of nozzles

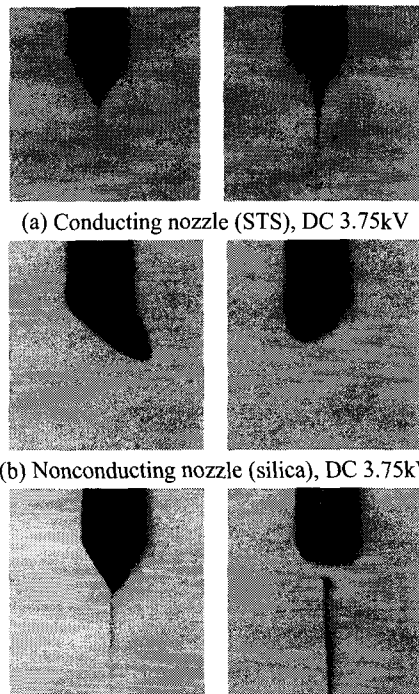


Fig. 4 Visualization of pivoting motion of liquid cone (Flow rate: $1.0 \times 10^{-4} \text{ ml/s}$)

적의 좌우 흔들림 현상이 없어졌음을 보여준다.

3.2 끝단 재질 젖음도(wettability)의 영향

Fig. 5는 스펀들 모드 영역에서 단순 STS 노즐과 금속 도포한 실리카 노즐을 사용한 경우에 입력전압 변화에 따른 평균입경(SMD)의 변화를 보여준다. 단순한 STS 노즐을 사용한 경우에는 금속 노즐과 접지전극 사이의 형성되는 축대칭 형태의 전장 때문에 액체 체적의 흔들림 현상이 일어나지 않으나, 불규칙한 코로나 방전현상에 의해 최소평균 입경을 가지는 입력전압 조건보다 높은 전압에서 미립화 효과가 저하된다. 이는 금속 노즐을 사용해 스펀들 모드를 관찰 했던 Cloupeau와 Prunet-Foch⁽¹⁰⁾와 동일한 결과이다. Cloupeau와 Prunet-Foch은 입력전압 증가에 따른 입경의 증가가 산재하는 코로나 방전(sporadic corona discharge)에 기인함을 광학적 사진기법에 의해 밝혔다. 도체내의 전하는 끝이 뾰족하고 전기력이 작용하는 방향으로 모여들으므로 강한 전기장을 만들고 이곳에서 코로나 방전을 발생시킨다. 방전을 통해 전하들이 방출되므로 방전 후 전하의 양이 감소하고 방전으로 인해 주위 환경이 바뀌기(공간 전하로 인해 주위 기체의 전기적 특성이 변함) 때문에 산발적인 방전이 일어난다. 고체표면에서의 산발적인 코로나 방전의 형태는 Chang 등⁽¹¹⁾의 논문에서 보고되었다. Sato 등⁽¹²⁾은 입력전압에 의한 평균입경의 증가가 전기적 방전현상 때문이고 코로나 방전 현상은 어두운 곳에서 눈으로 관찰할 수 있다고 보고하였다. 이에 비해 금 도포한 실리카 노즐의 경우에는 금 도포에 의해 생기는 대칭적이고 안정된 전기장이 액체 콘의 흔들림을 막고 동시에 노즐 끝부분이 실리카인 부도체로 되어 있어 금속에 의한 불규칙한 코로나 현상이 일어나지 않는다.

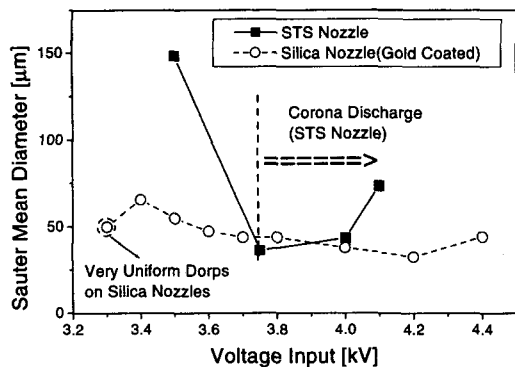
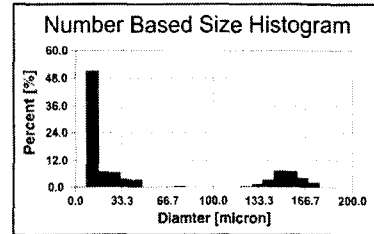
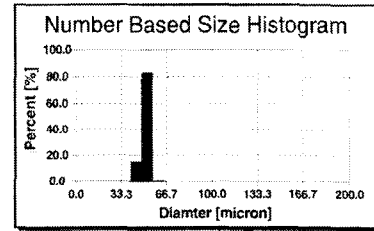


Fig. 5 Variation of SMD with voltage input for STS and gold-coated silica nozzles (Flow rate: 1.0×10^{-4} ml/s)

따라서, 금 도포한 실리카 노즐을 사용한 경우에 측정된 입력전압의 전체 범위에 걸쳐서 STS 노즐을 사용한 경우에 비해 상대적으로 작고 고른 평균입경을 보인다. 두 노즐 모두 표면이 금속이므로 동일한 형태의 전기장이 형성되며, 두 노즐들 사이의 가장 큰 차이는 김명찬 등⁽⁸⁾의 논문에서 이미 언급한 바 있는 노즐 끝단에서 STS와 실리카라는 재질의 차이로 인한 젖음도(wettability)이다. 이러한 젖음도의 차이가 입경분포에 미치는 영향은 스펀들 모드가 시작되는 입력 전압에서 입경분포를 비교하므로 알 수 있다. Fig. 6(a)는 노즐 끝에 젖음이 크게 발생하는 STS 노즐을 사용한 경우



(a) STS nozzle, DC: 3. 5kV, SMD=148μm



(b) Gold-coated silica nozzle, DC: 3. 3kV, SMD=50μm

Fig. 6 Drop size distributions with different nozzle materials (Flow rate: 1.0×10^{-4} ml/s)

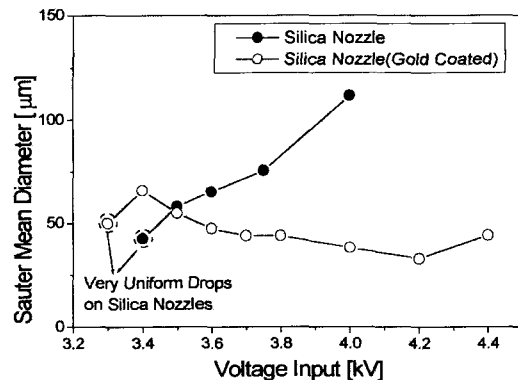
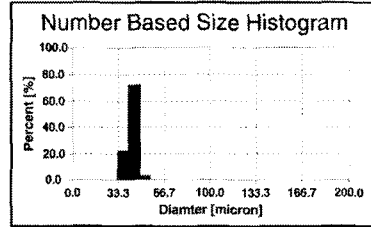


Fig. 7 Variation of SMD with voltage input for silica and gold-coated silica nozzles (Flow rate: 1.0×10^{-4} ml/s)

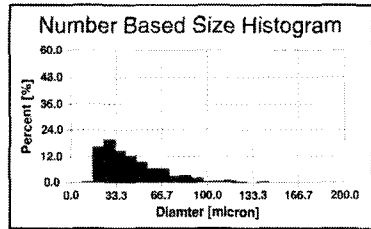
고 Fig. 6(b)는 노즐 끝에 젖음이 작게 발생하는, 금 도포한 실리카 노즐을 사용한 경우이다. 노즐 끝에 매달린 액체 체적으로부터 액적을 형성시키기 위해서는 전기력이 표면장력을 이길 수 있도록 정점에 많은 전하가 모이는 원추(콘) 형태의 액체 체적을 형성시키는 것이 반드시 필요하다. 노즐에 젖음이 크게 발생한 경우에는 액체체적이 바로 콘 모양으로 바뀌지 못하고 보다 긴 시간 과정을 거쳐야만, 콘 모양으로 바뀔 수 있다.⁽⁸⁾ 그런데, 공급 유량이 일정하기 때문에 액체 체적이 콘 형태로 변형되기 위한 시간이 길어지면 액체 콘에서 끊어져 나가는 액주의 체적이 커지므로 큰 액적이 만들어진다. 따라서, 단순한 STS 노즐을 사용한 경우인 Fig. 6(a)의 평균입경이 금 도포한 실리카 노즐을 사용한 경우인 Fig. 6(b)의 평균입경 보다 크게 나타난다. 또한, STS 노즐의 경우에는 큰 액적을 만드는 굵은 액주가 액체 콘으로부터 떨어져 나오면서, 작은 위성 액적들을 함께 만들어 내므로 두 개의 주된 입경분포를 보이는 분무군이 형성된다. 결과적으로 표면 젖음이 일어나지 않는 금속 도금된 실리카 재질의 노즐을 사용한 경우에만, 스프인들 모드가 시작되는 입력전압에서 Fig. 6(b)와 같은 균일 액적을 얻을 수 있다.

3.3 전기장 영향

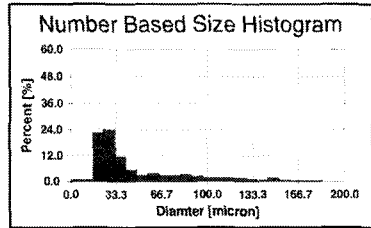
Fig. 7 은 스프인들 모드 영역에서 단순한 실리카 노즐과 금속 도포한 실리카 노즐을 사용한 경우에 입력전압 변화에 따른 평균입경(SMD)의 변화를



(a) DC: 3.40kV, SMD=44µm

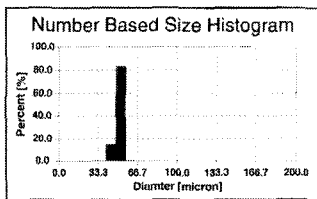


(b) DC: 3.75kV, SMD=76µm

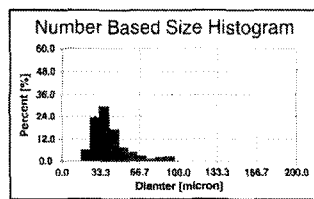


(c) DC: 4.00kV, SMD=112µm

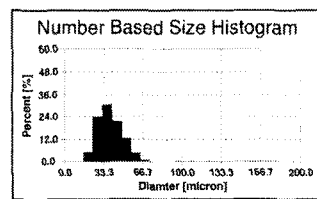
Fig. 8 Variation of the drop size distribution with voltage input (Silica nozzle, Flow rate: 1.0×10^{-4} ml/s)



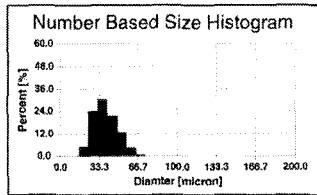
(a) DC : 3.3kV, SMD = 50µm



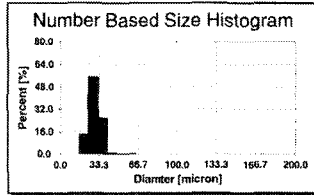
(b) DC : 3.5kV, SMD = 55µm



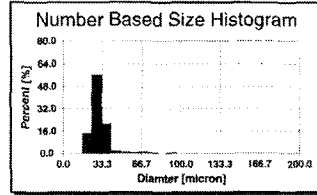
(c) DC : 3.7kV, SMD = 44µm



(d) DC : 4.0kV, SMD = 38µm



(e) DC : 4.2kV, SMD = 33µm



(f) DC : 4.4kV, SMD = 44µm

Fig. 9 Variation of drop size distribution with voltage input (Gold-coated silica nozzle, Flow rate: 1.0×10^{-4} ml/s)

보여준다. 또한 Fig. 8 과 Fig. 9 는 두 노즐 각각의 경우에 대하여 입력전압에 따른 입경분포를 보여주고 있다. 스피들 모드가 시작되는 입력전압에서는 같은 끝단 재질을 가지는 두 노즐 모두가 표면 젖음도가 동일하기 때문에 균일 액적(Fig. 6(b) 와 Fig. 8(a)의 조건)을 얻을 수 있다. 그러나, 입력전압이 증가함에 따라 실리카 노즐의 경우에는 콘이 좌우로 크게 흔들리면서 액주 생성 시간이 길어져 긴 액주가 만들어지고, 이로부터 큰 액적이 만들어져 평균입경이 증가하며 동시에 균일도도 저하된다(Fig. 8). 이에 비해, 도체인 금으로 도포된 실리카 노즐의 경우에는 노즐 표면의 금도금막과 접지전극 사이에 형성된 축대칭 형태의 전기장에 의해 노즐 끝에 매달린 액체 체적이 중앙을 벗어나 크게 흔들리는 현상이 방지된다. 또한 액체와 닿고 있는 노즐 끝부분이 실리카라는 부도체로 구성되어 있어, STS 노즐의 경우에 발생하는 불안정한 코로나 방전이 일어나지 않는다. 따라서, Fig. 7에서 볼 수 있듯이 평균입경은 3.3 - 4.4 kV 입력전압 전 범위에서 33 에서 66 마이크로론으로 작은 값을 갖는다. 단순한 실리카 노즐의 경우 스피들 모드가 시작되는 입력전압에서만 작고 균일한 액적을 얻을 수 있는 것에 비해 노즐 표면을 도체로 도포하는 경우에는 넓은 입력범위에서 안정적으로 작고 균일한 액적을 얻을 수 있음을 Fig. 9에서 확인할 수 있다. 본 연구에서 실험한 모든 입력전압 영역 내에서 100 마이크로론 미만의 입경을 가지는 액적들 만이 존재한다. 따라서, 넓은 입력전압 조건(3.3 - 4.4kV)에서 좁은 입경 분포를 가지는 미세 액적들을 얻을 수 있다.

4. 결 론

- (1) 비전도성 재질로 만들어진 노즐의 경우에는 노즐 끝에 매달린 액체 체적이 중앙을 벗어나 흔들리는 현상이 일어나며 이러한 흔들림 현상이 입력전압이 증가함에 따라 평균입경을 증가시키는 원인이 된다.
- (2) 전도성 노즐의 경우에는 입력전압이 증가해도 노즐 끝에서의 액체 체적의 흔들림은 없으나, 노즐 끝단에서의 불규칙한 코로나 방전은 평균입경 증가의 원인이 된다.
- (3) 비전도성이고 표면 젖음이 일어나지 않는 실리카 노즐표면을 금속도금하면 입력전압 증가에 따른 코로나 방전현상을 막을 수 있고 도포금속막에 의해 형성되는 축대칭의 전기장으로 인해 액체체적의 흔들림도 막을 수 있다. 그러므로 넓은 입력전압 범위에서 미세 균일 액적을 얻을 수

있다.

후 기

본 연구는 국제공동연구 사업(M1-0027-000005-01-H-02-001-3600, KISTEP)과 국가지정 연구실 사업(M1-9911-00-0009, KISTEP) 및 과학재단 지정 연소기술 연구센터(CERC) 사업의 일환으로 지속되어 오고 있으며, 이와 아울러 BK21 사업의 일부 지원으로 수행되었습니다.

참고문헌

- (1) Lohmann, M., Beyrand, H. and Schmidt-Ott, A., 1997, "Size and Charge Distribution of Liquid Metal Electro spray Generated Particles," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 28, pp. s349~s350.
- (2) Atten, A. and Oliveri, S., 1992, "Charging of Drops Formed by Circular Jet Breakup," *J. Electrostatics*, Vol. 29, pp. 73~91.
- (3) Kidd, P. W., 1968, "Parametric Studies with a Single-Needle Colloid Thruster," *J. Spacecraft*, Vol. 5, No. 9, pp. 1034~1039.
- (4) Borra, J.-P., Camelot, D., Marijnissen, J. C. M. and Scarlett, B., 1997, "A New Production Process of Powders with Defined Properties by Electrohydrodynamic Atomization of Liquids and Post-Production Electrical Mixing," *J. Electrostatics*, Vol. 40&41, pp. 633~638.
- (5) Fu, D., 1995, "Processing of Porcelain Enamel Glass Powders for Electrostatic Spraying," *Powder Technology*, Vol. 85, pp. 65~69.
- (6) Hoyer, B., Sorensen, G., Jensen, N., Nielsen, D. B. and Larsen, B., 1996, "Electrostatic Spraying: A Novel Technique for Preparation of Polymer Coatings on Electrodes," *Anal. Chem.*, Vol. 68, pp. 3840~3844.
- (7) Zomeren, A. A. V., Kelder, E. M., Marijnissen, J. C. M. and Schoonman, J., 1994, "The Production of Thin Films of LiMn_2O_4 by Electro spraying," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 25, No. 6, pp. 1229~1235.
- (8) Kim, M. C., Lee, S. Y., Kim, S. S. and Kim, Y. D., 2001, "Generation of Uniform Fine Droplets under Spindle Mode in Electrohydrodynamic Atomization," *Trans. KSME*, Vol. 25, No. 7, pp. 923~932 (in Korean).
- (9) Kim, J. Y., Chu, J. H. and Lee, S. Y., 1999, "Improvement of Image Processing Technique for Drop Size Measurement," *Atomization and Sprays*, Vol. 9, pp. 313~329.
- (10) Cloupeau, M. and Prunet-Foch, B., 1990, "Electrostatic Spraying of Liquids: Main Functioning Modes," *J. Electrostatics*, Vol. 25, pp. 165~184.

- (11) Chang, J., Lawless, P. A. and Yamamoto, T., 1991, "Corona Discharge Processes," *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol. 19, No. 6, pp. 1152~1166.
- (12) Sato, M., Tkahashi, H., Awazu, M. and Ohshima, T., 1999, "Production of Ultra-Uniformly-Sized Silica Particles by Applying ac Superimposed on dc Voltage," *J. Electrostatics*, Vol. 46, pp. 171~176.