

질소이온 조사된 알루미늄 표면의 표면에너지 변화 및 증기응축 현상 관찰

Observation of Surface Energy Variations and Condensate Behaviors on Nitrogen Ion Implanted Aluminum Surfaces

김기욱(Kiwook Kim), 정지환(Ji Hwan Jeong)[†]

부산대학교 기계공학부

School of Mechanical Engineering, Pusan National University, Busan, 46241, Korea

(Received August 25, 2017; revision received September 18, 2017; Accepted: September 28, 2017)

Abstract Nitrogen ion with various levels of dose and irradiation energy was irradiated on aluminum surfaces. Contact angle of surface was increased and surface color was changed by nitrogen ion implantation. During steam condensation experiment using nitrogen ion implanted specimen, dropwise condensation initially occurred on specimens. However, condensation mode eventually changed into filmwise condensation. The color of the surface was also changed from yellow-brown to silver-white. This change of surface color and condensation mode were results of hydrolysis reaction between condensate and nitrogen ion implanted on aluminum surfaces.

Key words Ion implantation(이온조사) Surface energy(표면에너지), Nitrogen(질소), Aluminum(알루미늄)
Dropwise condensation(액적응축), Filmwise condensation(액막응축), hydrolysis(가수분해)

[†] Corresponding author, E-mail: jihwan@pusan.ac.kr

기호설명

T_{surf} : 응축벽면온도 [°C]

T_{sat} : 증기의 포화온도 [°C]

k_{al} : 알루미늄의 열전도도 [$W/(m^2 \cdot K)$]

h : 응축열전달계수 [$W/(m^2 \cdot K)$]

q'' : 열유속 [W/m^2]

1. 연구배경 및 목적

다양한 열에너지 시스템은 증기응축 현상을 이용하여 열을 방출하고, 이를 위해 응축기가 사용된다. 응축기는 열전도율이 높은 금속으로 제작되며, 응축 시 응축수가 전열면을 뒤덮는 액막응축이 발생한다. 응축수가 뒤덮인 전열 면에서는 응축수의 현열이 전달된다. 따라서, 많은 연구자들이 표면의 젖음성(wettability)을 개선시켜 액적응축을 구현하려는 연구를 수행하고 있다.

젖음성을 개선시키기 위하여 표면에너지가 낮은 고분자물질 코팅기술이 주로 연구되어 왔다. 하지만, 고분자 물질은 공기 중에서 산화되거나, 오염되기 쉬운 특성이 있어 공학적으로 활용되지 못했다. 또한, 다이아몬드 유사 탄소코팅(diamond-like carbon coating, DLC), 플루오로(fluoro)기가 있는 물질, 그리고 테플론(polytetrafluoroethylene, PTFE) 등을 이용하여 소수성 표면을 제작하고 액적응축을 구현하는 연구가 진행되었으나, 고온에서 특성이 장시간 지속되지 못해 기술이 상용화되지 못했다.^(1,2)

코팅기술과는 달리, 이온을 조사하는 방법은 표면 자체의 성질을 변화시키기 때문에 안정적인 물성변화를 구현할 수 있다. Rausch et al.^(3,4)은 유기이온을 조사한 금속 표면에서 표면에너지 변화와 응축열전달 특성을 연구하였다.

티타늄, 알루미늄 등의 금속 전열면에 다양한 종류의 유기이온을 조사하여 표면에너지 변화를 관찰하고, 증기응축 실험을 수행하였다. 유기이온들 중에서 질소이온을 조사한 알루미늄 표면에서는 열전달 성능이 2배 향상되었으며, 액적응축이 장기간 유지됨을 보고하였다. 하지만, 20 keV, 10^{16} ions/cm² 조건에 대한 제한적인 연구로, 조사에너지와 조사량 변화에 따른 표면에너지 및 열전달 성능변화 관계를 규명하지 못했다.

본 연구에서는, 다양한 조건의 질소이온을 알루미늄 표면에 조사하였다. 이후, 이온조사에 따른 표면에너지 변화를 분석하고, 증기응축 실험을 수행하여 표면에서 발생하는 응축수의 거동을 관찰하였다.

2. 실험방법

2.1 표면가공

이온조사에 따른 표면에너지 변화를 분석하기 위해, 가로와 세로의 길이가 각각 28 mm, 두께가 2 mm인 쿠폰 형태의 알루미늄 시편을 제작하였다. 이온을 조사하기 전, 제조공정에서 발생하는 이물질과 산화막의 영향을 제거하기 위해 표면을 경면가공 하였다. 이후, 이소프로필 알코올(isopropyl alcohol)과 증류수, 초음파세척기를 이용하여 표면을 세척하고 오염을 방지하기 위해 밀봉 보관하였다. 경면가공이 완료된 시편은 Fig. 1의 기체 이온 조사장치 이용하여 질소이온을 조사하였다. 챔버에 진공을 형성시킨 이후, 질소가스를 챔버내부로 주입하였다. 텅스텐 필라멘트에 의해 전자충돌이 발생하면서 이온화된 질소는 슬릿을 통해 외부로 방출된다. 방출된 이온은 가속부(acceleration tube)의 주변 전기장에 의해 유도 가속되어 시편에 조사된다. 실험에 사용된 질소 이온 조사조건을 Table 1에 나타내었다.

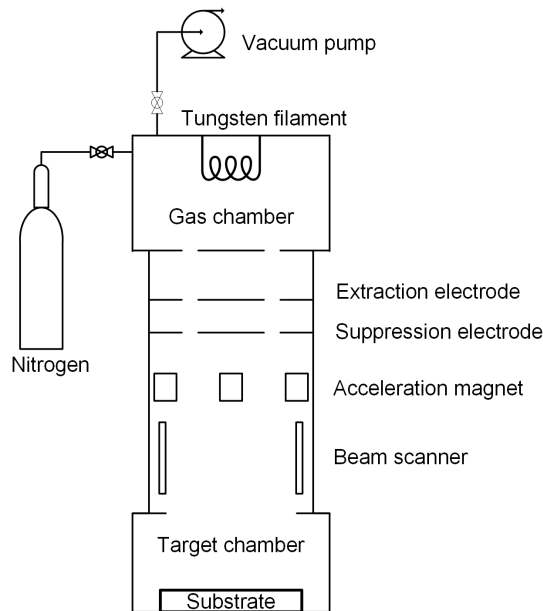


Fig. 1 Schematic of gaseous ion beam accelerator.

Table 1 Conditions for nitrogen ion implant on aluminum test coupon specimens

keV	ions/cm ²	10^{15}	10^{16}	10^{17}
	10		a	b
20		d	e	f

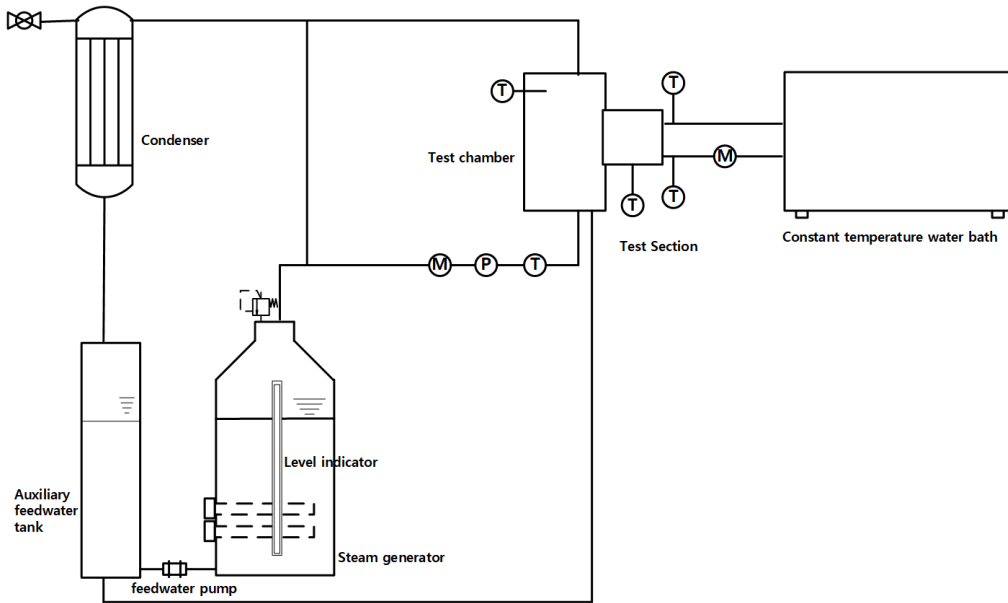


Fig. 2 Schematic of steam condensation test facility.

2.2 증기응축실험

질소이온 조사표면의 증기응축 특성을 관찰하기 위해 실험장치를 구성하였으며, 개략도를 Fig. 2에 나타내었다. 히터의 출력조절에 의해 생성된 증기는 테스트 챔버 내부로 유입된다. 생성된 증기가 챔버 내부로 과잉 공급되는 경우, 우회시켜 유입되는 증기량을 조절하였다. 시스템 내부압력은 응축기의 냉각수 유량을 조절하여 대기압 수준의 상태로 유지하였다. 테스트 챔버는 표면에서 생성되는 응축수 거동의 관찰이 가능하도록 10 mm 두께의 강화유리를 전면에 설치하였다. 또한, 외부와의 열전달을 방지하기 위하여 주위를 그라스울(glass wool)로 단열하였다.

증기응축 실험을 위해 원형 실린더의 형태의 시험편을 제작하였다. 제작 시험편의 한 쪽에는 냉각 유로를, 반대쪽은 경면 가공하여 응축 면으로 사용하였다. 증기응축 성능 변화에 따른 열전달량을 측정하기 위해, 시험편의 중심선을 따라 등간격으로 4개의 구리-콘스탄탄(copper-constantan, type T) 열전대를 설치하였다. 실린더형 시험편에서의 온도구배와 1차원 열전도 방정식을 이용하여 시험편의 열유속을 계산하였다. 응축면의 온도는 측정된 온도와 계산된 열유속 데이터를 이용하여 식(1)과 같이 계산하였다.

$$T_{surf} = T_1 + \frac{q'' \Delta x}{k_{al}} \quad (1)$$

여기서, T_{surf} 는 벽면 온도를, T_1 은 응축 면과 가장 가까운 열전대로부터 측정된 온도, Δx 는 T_1 열전대와 응축면과의 거리, q'' 는 응축면을 통해 전달되는 열유속을 나타내며, k_{al} 은 알루미늄의 열전도도를 나타낸다. 응축 열전달계수는 측정된 열유속 데이터와 증기와 응축 면의 온도 차를 이용하여 아래 식(2)와 같이 계산하였다.

$$h = \frac{q''}{(T_{sat} - T_{surf})} \quad (2)$$

여기서, h 는 응축열전달 계수, T_{sat} 은 증기의 포화온도를 의미한다.

3. 실험 결과

3.1 표면에너지 변화 관찰

질소이온이 조사된 알루미늄 시편 사진을 Fig. 3에 나타내었다. 알루미늄의 색상과는 달리, 질소이온이 조사된 표면은 노란색으로 변했으며, 이온조사량이 증가할수록 색상이 짙게 나타났다. 표면 색상변화는 질소와 알루미늄이 반응하여 화합물이 형성된 결과이며, 질화알루미늄(aluminum nitride)의 색을 띠는 것으로 확인되었다.

이온조사에 의한 표면에너지 변화를 분석하기 위해 접촉각을 측정하였다. 표면의 5개 지점에 10 μ l의 증류수를 떨어뜨려 접촉각을 측정하였으며, Fig. 4에 평균값과 표준편차를 나타내었다. 질소이온 조사표면은 경면가공한 알루미늄 표면과 비교하여 접촉각이 증가하는 경향을 보였다. 또한, 이온조사량이 증가할수록 접촉각이 증가하였으며, 조사에너지가 표면에너지 변화에 미치는 영향은 적은 것으로 나타났다.

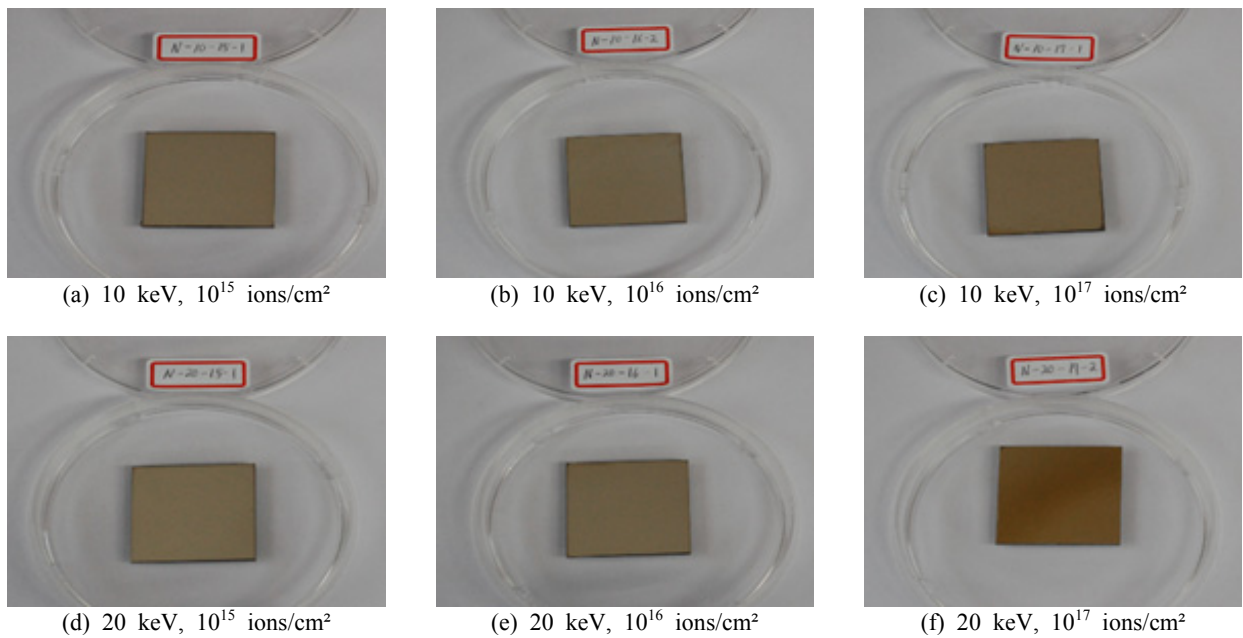


Fig. 3 Surface color observation of nitrogen ion implanted aluminum surfaces.

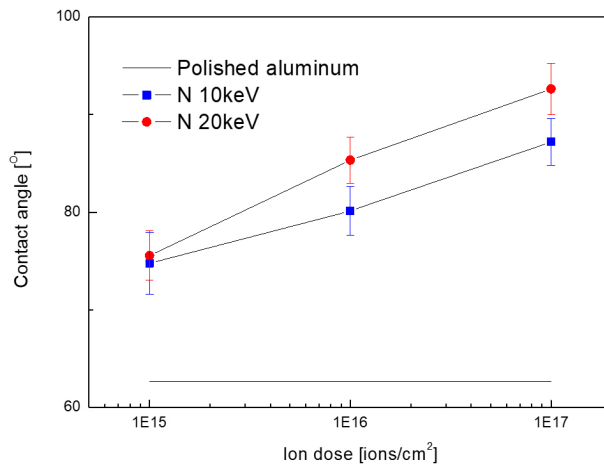


Fig. 4 Contact angle variation of nitrogen ion implanted aluminum surfaces.

3.2 질소이온조사 표면의 응축수 거동 변화

증기응축 실험장치를 검증하기 위해, 경면가공한 알루미늄 실린더 시편을 이용하여 액막응축을 일으키고 열전달 성능을 평가하였다. 순수증기 생성을 위해 장시간 물을 끓여 불응축가스 영향을 감소시킨 이후, 증기응축 실험을 진행하였다. 측정결과는 액막응축의 이론적 해인 Nusselt theory와 비교하였으며, 원형 시편에 적용 가능 하도록 특성길이를 고려한 O'Neil and westwater⁽⁵⁾의 수정관계식을 사용하였다. 경면가공한 알루미늄 실린더의 응축 면에서는 응축수가 표면을 완전히 뒤덮는 액막응축이 구현되었으며, 열전달 성능 평가 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 실험에서 측정된 열유속과 응축열전달계수는 Nusselt theory와 $\pm 5\%$ 이내에서 잘 일치하였다.

실험장치 검증을 진행한 이후, 실린더 시편의 표면에 질소이온을 조사하여 증기응축 실험을 수행하였다. 질소이온을 조사한 응축 면에서는 초기 액적의 형태로 응축수가 배출되었다. 하지만, 정상상태를 유지하는 과정에서 응축수 배출형태의 변화가 관찰되었다. 응축면에서 액막이 발견된 이후, 시간이 경과함에 따라 그 크기가 점차 증가하였고, 결국 액막응축으로 변화하였다. 응축수 배출형태 변화는 Fig. 6과 같이 Rausch et al.⁽³⁾의 실험조건(Fig. 6(b))을 포함한 모든 질소이온 조사조건에서 동일하게 나타났다. 또한, Fig. 6(c)에서는 응축면의 물성변화를 예측할 수 있는 가시적인 색상변화가 관찰되었다.

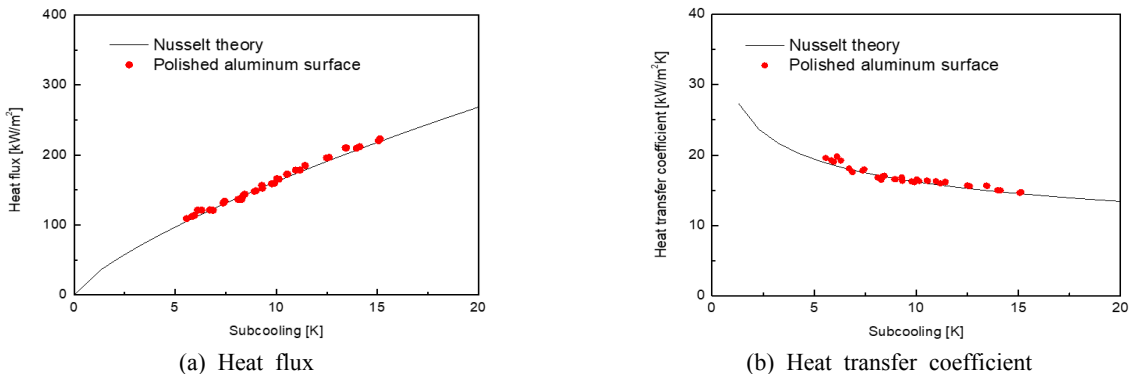


Fig. 5 Condensation heat transfer performance on mirror polished aluminum surface.

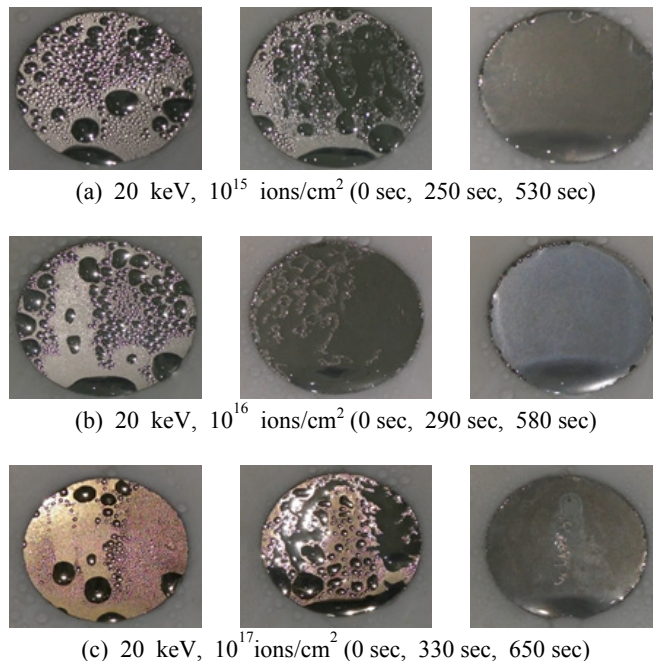


Fig. 6 Condensation mode transition on nitrogen ion implanted surfaces according to time variation.

3.3 증기응축 표면 분석

응축 면에서 배출되는 응축수의 거동과 색상 변화의 원인을 분석하기 위해 표면의 접촉각을 측정하였으며, 그 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 이온조사에 의해 70~90°의 접촉각이 측정된 표면은 응축실험 이후 색상변화와 함께 접촉각이 11~15°로 크게 낮아졌다. 이는 질소이온조사 표면이 증기응축과정에서 변화되었음을 의미한다.

응축실험에 의한 표면조성 변화를 분석하기 위해, 알루미늄 쿠폰형 시편에 20 keV, 10¹⁷ ions/cm² 조사량으로 질소이온을 조사하였다. 이후, 조사시편을 실린더형 시편에 부착하여 대기압 수준의 압력과 과냉도 10 K 조건에서 1시간 동안 증기를 응축시켰다. 실험 전과 실험 후의 표면은 이차 이온 질량 분석기(secondary ion mass spectroscopy, SIMS)를 이용하여 원소의 분포변화를 분석하였으며, 그 결과를 Fig. 8에 나타내었다.

Fig. 8에서 표면에 조사된 질소는 증기응축 실험에 의해 그 양이 감소하고 산소가 급격히 증가하는 결과를 보였다. 이는 질소이온조사에 의해 생성된 질화알루미늄이 응축수와 반응하여 가수분해 반응이 발생한 결과이다. 응축수 배출형태의 변화, 표면의 색상변화는 식(3)~식(5)와 같이 질화알루미늄의 가수분해 현상을 표현한 화학량 적 관계식으로 설명가능하다.^(6,7)

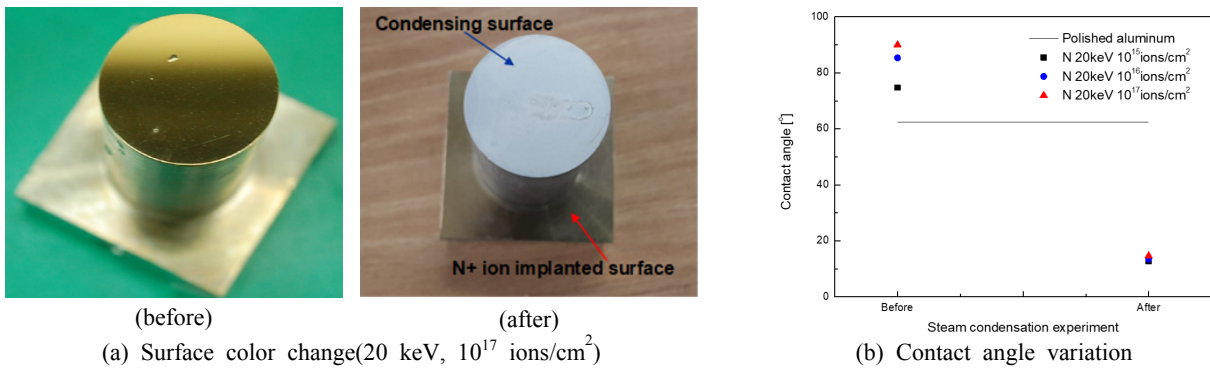


Fig. 7 Surface characteristic change according to steam condensation experiment.

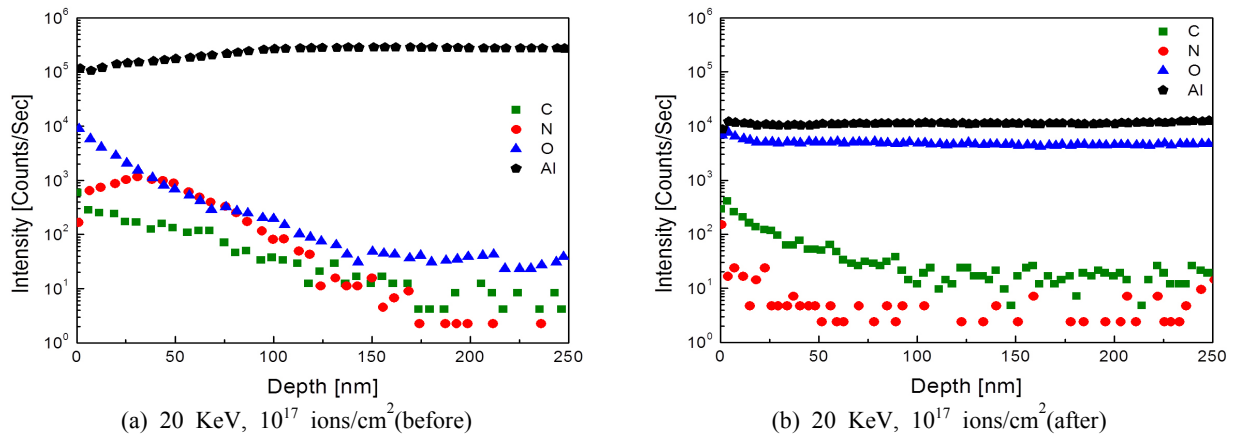


Fig. 8 Depth profile of nitrogen ion implanted surface before and after the steam condensation experiment.

응축수와 반응한 질화알루미늄은 가수분해 반응이 진행되는 과정에서 불응축 가스인 암모니아를 생성시켜 열전달 성능을 감소시킨다. 이후, 알루미늄 표면은 응축수와 반응하여 산화 현상이 가속화된다. Rausch et al. 은 이온조사가 불균일하게 진행될 경우 액적과 액막이 동시에 발생하는 혼합응축이 구현될 수 있음을 보고하였다. 또한, 일부 실험에서 액막응축이 구현됨에도 불구하고 Nusselt theory 대비 열전달 계수가 감소하는 현상을 발견하였으나, 이를 unknown effect로 정의하였다.⁽³⁾ 본 연구의 실험결과에서는 질소이온 조사표면에서 발생하는 액막응축과 표면 색상변화는 가수분해 현상에 의한 결과이며, 이로 인해 액막응축이 구현되고 불응축 가스가 형성되어 열전달 성능 감소를 야기시키는 것으로 분석되었다. 또한, 질화알루미늄은 물의 온도가 상승함에 따라 가수분해 반응이 가속화되기 때문에^(6,7), 과냉도가 낮은 조건에서부터 실험한 본 연구에서는 빠른시간 내에 액막응축이 구현된 것으로 분석되었다.

4. 결 론

본 연구에서는 다양한 조건의 질소이온을 알루미늄 표면에 조사하여, 그에 따른 표면에너지 변화를 분석하고 증기응축 거동변화를 분석하였다. 조사표면은 질소이온과 반응하여 질화알루미늄이 형성되어, 가시적인 색상변화 및 표면에너지 변화가 관찰되었다. 질소이온 조사표면은 초기 액적응축이 구현되었으나, 시간이 경과함에 따라 액막응축으로 변하였다. 이러한 현상은 표면에 형성된 질화알루미늄이 응축수와 반응하여 가수분해 현상이 발생하여 표면이 산화되고, 불응축가스가 생성되어 열전달 성능을 감소시키는 것으로 분석되었다. 질소이온을 조사한 알루미늄 표면은 작동유체로 물을 사용하거나, 고온의 유체를 냉각시키는 에너지시스템 또는 열교환기에 적용하기 위해서는 운전조건 또는 환경에 대한 추가적인 검증이 필요할 것으로 판단된다.

후 기

이 논문은 부산대학교 기본연구지원사업(2년)에 의하여 연구되었음.

References

1. Kim, K., Do, S. C., Ko, J. S., and Jeong, J. H., 2013, Observation of water condensate on hydrophobic micro textured surfaces, *Heat and Mass Transfer*, Vol. 49, No. 7, pp. 955-962.
2. Bang, I. C. and Jeong, J. H., 2011, Nanotechnology for Advanced Nuclear Thermal-hydraulics and Safety : Boiling and Condensation, *Nuclear Engineering and Technology*, Vol. 43, No. 3, pp. 217-242.
3. Rausch, M. H., Fröba, A. P., and Leipertz, A., 2008, Dropwise condensation heat transfer on ion implanted aluminum surfaces, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 51, No. 5-6, pp. 1061-1070.
4. Rausch, M. H., Leipertz, A., and Fröba, A. P., 2010, On the characteristic of ion implanted metallic surfaces inducing dropwise condensation of steam, *Langmuir*, Vol. 26, No. 8, pp. 5971-5975.
5. O'neil, G. A. and Westwater, J. W., 1984, Dropwise condensation of steam on electroplated silver surfaces, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 27, No. 9, pp. 1539-1549.
6. Bowen, P., Highfield, J. G., and Mocelin, A., 1990, Degradation of aluminum nitride powder in an aqueous environment, *Journal of American Ceramic Society*, Vol. 73, No. 3, pp. 724-728.
7. Fukumoto, S., Hookabe, T., and Tsubakino, H., 2000, Hydrolysis behavior of aluminum nitride in various solutions, *Journal of materials science*, Vol. 35, No. 11, pp. 2743-2748.