

## 가열되는 수평면에 위치한 얇은 액막의 불안정성 해석

전홍재 · 최창균<sup>†</sup> · 황인국\*

서울대학교 공과대학 화학공학과

\*수원대학교 공과대학 화학공학과

(1997년 10월 29일 접수, 1998년 2월 16일 채택)

## An Analysis of Instabilities of Horizontal Thin Liquid Films Heated from Below

Hong Jae Jeon, Chang Kyun Choi<sup>†</sup> and In Gook Hwang\*

Department of Chemical Engineering, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

\*Department of Chemical Engineering, The University of Suwon, Kyungki-Do 445-643, Korea

(Received 29 October 1997; accepted 16 February 1998)

### 요 약

본 연구에서는 밑에서 등온 가열되는 수평판 위에 놓여 있는 얇은 액막의 안정성을 이론적으로 조사하였다. 윗면은 공기와 접하고 있는 자유 경계면으로 이를 통해 열이 방출되며 또한 굴곡이 가능하다. 장파에 대하여 액막의 안정성을 연구하였으며 초기 액막의 두께를 수 nm에서 수 mm에 이르기까지 변화시켜 가며 조사하였다. 윤활유동 근사 아래 선형 안정성 이론을 적용하여 이론을 전개하였고 액막이 비적실 특성을 보이는 물 또는 에탄올로 이루어진 경우에 적용하여 보았다. 그 결과 액막의 두께가 매우 얇은 경우에는 분자간의 인력 때문에 교란의 크기가 성장을 하여 액막이 불안정해지지만 어느 크기 이상의 두께를 갖는 액막은 장파형태의 교란으로부터 안정해짐을 알 수 있었다.

**Abstract**—In this study a thin liquid film on the horizontal plane is considered. It is heated isothermally from the lower rigid boundary and its upper deformable, free interface is open to the air. Through the interface the heat flows upward. The hydrodynamic instabilities of liquid films are analyzed theoretically when the long-wave type disturbances are introduced. This analysis is performed for non-wetting systems with varying the film depth from the order of nm to that of mm. The disturbance equations are obtained by applying the linear stability theory under the lubrication approximation and the result is applied to a liquid film of water or ethanol. When the film depth is very small, it is shown that the liquid film is unstable owing to the intermolecular forces. But when the depth of a liquid film is above a certain value, the liquid film becomes stable against long wave instabilities due to gravity forces.

**Key words:** Gravity Forces, Intermolecular Forces, Long-Wave Instabilities, Thermocapillary Forces, Thin Liquid Film

### 1. 서 론

두께가 얇은 액막의 안정성에 대한 연구는 이론적으로 활발히 진행되어 왔다. 이는 액막내의 유동이 물질전달, 열전달 특성에 변화를 가져오고, 따라서 증발, 코팅 등과 관련된 제조공업에서 제품의 정밀화에 유동의 제어가 매우 중요한 역할을 하기 때문이다. 평평한 고체면위에 액막이 놓여 있을 때, 그 액막의 두께가 매우 얇은 경우에는 van der Waals 힘으로 표현되는 분자들간의 인력이 액막의 안정성에 중요한 영향을 끼치게 되며 액막의 파열까지도 가져올 수 있다. 그것은 액막의 두께가 1 nm에서 100 nm 정도로 얇은 경우에는 상부의 기체와 접한 액막 계면의 분자까지도 바닥면의 고체분자와 상호작용이 가능하게 되어, 액체분자끼리의 인력과 액체분자와 고체분자간의 인력의 차이정도가 액막의 안정성을 결정하는 중요한

요인이 되기 때문이다. 이와 같은 액막 두께의 영향을 분자인력과 연관시켜 체계화한 사람은 Deryagin[1]으로 얇은 액체 층에서 나타나는 과압력을 'disjoining pressure'라고 명명하였다. 이와 같은 과압력의 영향으로 액막이 파열에 이를 수도 있는데 Scheludko[2]는 열역학적인 접근을 통해 액체 박막의 파열과 표면의 작은 굴곡에 대한 불안정성의 관계를 연구하여 표면굴곡의 임계파장을 구하였다. Vrij[3]는 액막이 불안정한 경우 액막이 파열에 이르는 시간을 제시하였고, Ruckenstein과 Jain[4]은 윤활 유동(lubrication) 근사를 사용하여 교란의 최대성장률과 이때의 파장을 구하고, 교란의 성장 및 소멸을 가르는 임계파장의 길이가 액막의 두께에 비해 매우 크다는 것을 보였다. Williams와 Davis[5]는 이들의 결과에 근거를 두고 비선형 안정성이론을 적용하여 액막의 초기 상태부터 파열에 이르기까지 계면 모양의 전개를 보여주었다. 이상의 연구들이 모두 액막이 등온인 경우에 대해서 행하여진 것에 반해 Burelbach 등[6]은 액막내에 가열 등의 방법에 의해서 온도장이 성립된 경우에 대해서 비선형 안정

<sup>†</sup>E-mail : ckchoi@plaza.snu.ac.kr

성이론을 적용하여 연구하였다. 이 경우에는 분자간에 작용하는 힘이 액막의 안정성에 영향을 끼치지 못할 만큼 초기 액막이 두꺼운 경우에도 증발이나 열모세관(thermocapillarity) 현상으로 인해 전체적 또는 국소적으로 액막이 얇아지고 여기서 분자간의 인력이 크게 영향을 미칠 수 있게 되어 액막이 파열에 이를 수 있음을 보였다. 이와 같은 현상들은 Reiter[7]의 실험에 잘 설명되어 있다. 그는 폴리스티렌을 톨루엔에 녹인 용액으로 실리콘 웨이퍼 위에 두께 10 nm 이하의 액막을 만들어 실험하여 Ruckenstein과 Jain의 이론의 타당성을 어느 정도 보여주었다.

위에서 언급한 바와 같이 최근의 연구는 주로 비선형성을 강조하여 이루어져 왔는데 이와 달리 교란의 크기가 작다는 가정 하에 교란의 제곱항을 무시하는 선형이론은, 비선형이론에서처럼 교란이 성장을 하여 커지는 경우에 종국적인 액막의 모양은 알려줄 수는 없으나, 해석적으로 접근함으로써 여러 가지 조건들을 수식에 의해 직접 나타낼 수 있고 물리현상들을 쉽게 이해할 수 있게 해 주는 장점이 있다. 따라서 본 연구에서는 이러한 선형이론을 적용하였으며 1-100 nm 정도의 두께영역에서 분자간의 인력으로 인한 액막의 불안정성에 관한 기존의 연구결과를 확장하여, 1 nm에서 1 mm에 이르기까지의 두께영역에서, 분자간의 인력과 표면장력 영향에 따른 열모세관 현상으로 인한 액막의 불안정성을 장파형태의 교란을 대상으로 연구하였다. 본 연구에서 고려한 계는 수평면 위에 놓여 있는 액막으로 아래로부터 등은가열되고 윗면은 공기와 접하여 열이 방출된다. 이 액막의 표면과 내부에 장파형태의 교란이 도입되었을 때의 액막의 불안정성을 윤활유동 근사 아래 물과 에탄올 계를 중심으로 조사하였다.

## 2. 이 론

### 2-1. 기본계와 지배방정식

본 연구의 대상은 Fig. 1에 보이는 바와 같이 수평면에 위치한 두께가  $H_0$  인 액막이다. 아래의 고정경계면은 온도  $T_s$ 로 등은가열되고 윗면은 벌크 온도가  $T_a$ 인 공기와 접하고 있으며 변형이 가능한 자유경계면이다. 기본온도분포  $T_0$ 는 선형으로 다음과 같은 관계를 만족한다.

$$\frac{dT_0}{dz'} = -\frac{\Delta T}{H_0} = -\Phi \quad (1)$$

여기에서  $\Phi$ 는 초기온도 구배이며,  $\Delta T$ 는 액막 상하의 온도차를 나타내며 그 부호는 양이다. 이러한 계에서  $H_0 > 10^{-3}$  m인 경우에 주요 무차원군은 다음과 같이 정의된 Rayleigh 수  $Ra$ , Marangoni 수  $Ma$ , 그리고 Biot 수  $Bi$ 이다

$$Ra = \frac{gb'\Delta TH_0^3}{\nu\alpha}, \quad Ma = \frac{\gamma\Delta TH_0'}{\mu\alpha}, \quad Bi = \frac{h_a H_0'}{k_L} \quad (2)$$

$g$ 는 중력가속도,  $b'$ 은 열팽창계수,  $\alpha$ 는 열확산계수,  $\nu$ 는 동점도,  $\gamma$ 는

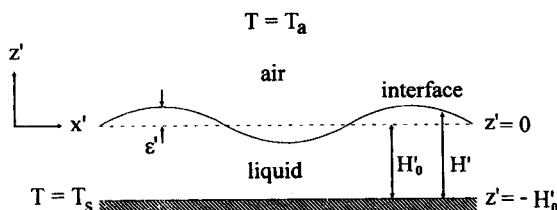


Fig. 1. Schematic diagram of present system.

온도에 따른 표면장력( $\sigma$ )변화의 역기울기( $= -d\sigma/dT$ ),  $\mu$ 는 점도,  $h_a$ 는 공기층에서 열전달 계수,  $k_L$ 는 열전도도이다. 위의 기호들은 액상에 해당되는 물성이다.

위의 계는 윗면이 단열, 즉  $Bi=0$ 일 때,  $Ma \geq 80$ 이면 표면장력의 변화에 따른 Marangoni-Bénard 대류가 발생하고 윗면이 일정 열속인 경우  $Ra \geq 669$ 이면 부력에 기인한 Rayleigh-Bénard 대류가 발생한다는 것이 잘 알려져 있다[8]. 일반적으로  $Bi$ 값이 커지면 계는 안정화되어 자연대류가 발생하는 임계값들은 커지게 된다. 식 (2)에서 보인 관계에서  $Ra \propto H_0^3$ ,  $Ma \propto H_0'$ 이므로  $H_0$ 가 작아지면 Marangoni-Bénard 대류, 즉 열모세관 현상에 따른 자연대류가 중요하게 된다.  $H_0$ 값이 매우 작아지면 자연대류는 발생하지 않게 되나 London-van der Waals 작용력 등이 작용하게 되어 또 다른 형태의 불안정성으로 인해 액막의 파열을 가져오게 된다. 따라서  $H_0 = O(\mu m)$ 이 되면 파장이 매우 긴, 즉 장파형태의 교란이 들어오고 이때 지배방정식은 윤활유동 근사(lubrication approximation)를 적용할 수 있다고 알려져 있다[4]. 이에 따라 Fig. 1에 보인 2차원 유동에 대하여 Ruckenstein과 Jain[4]의 결과에 부가하여 온도변화와 중력변화를 고려한 다음과 같은 식들을 적용한다.

$$(continuity) \quad \frac{\partial u'}{\partial x'} + \frac{\partial w'}{\partial z'} = 0 \quad (3)$$

$$(motion) \quad \mu \frac{\partial^2 u'}{\partial z'^2} = \frac{\partial p'}{\partial x'} + \frac{\partial \phi'}{\partial x'} \quad (4a)$$

$$0 = \frac{\partial p'}{\partial z'} + \frac{\partial \phi'}{\partial z'} \quad (4b)$$

$$(energy) \quad -w' \Phi = \alpha \frac{\partial^2 T_1'}{\partial z'^2} \quad (5)$$

$$(state) \quad \sigma = \sigma_s - \gamma(T - T_s) \quad (6)$$

여기에서  $p'$ 은 중력효과를 포함한 동압력(dynamic pressure),  $u'$ 은  $x'$ 방향 속도,  $w'$ 은  $z'$ 방향 속도,  $T_1'$ 은 온도교란량이며,  $\phi'$ 은 단위부피당 포텐셜에너지로 액체분자간의 인력과 액체와 바닥면 고체분자간의 인력의 차이를 나타낸다. 액막의 두께가 얇은 경우에는 분자간의 상호작용이 가능한 거리보다 액막의 두께가 작아 계면의 액체분자까지도 바닥면의 고체분자와 상호작용이 가능하게 되어 액막의 액체분자들이 받는 힘은 벌크상으로 있을 때와는 매우 달라지게 되므로 이를 고려하기 위해 도입된 항이다. 여기에서 밀도  $\rho$ 는 일정하다고 가정하며 에너지식 (5)는 선형화된 식이다. 위의 식들에 적용할 경계조건들은 다음과 같다[4, 9].

at interface  $\mathcal{E}'$  (at  $z \approx 0$ )

$$(normal \ stress) \quad p_a' - p' + 2\mu \frac{\partial w'}{\partial z'} = \sigma \frac{\partial^2 \mathcal{E}'}{\partial x'^2} \quad (7a)$$

$$(tangential \ stress) \quad \mu \left( \frac{\partial u'}{\partial z'} + \frac{\partial w'}{\partial x'} \right) = \frac{\partial \sigma}{\partial x'} \quad (7b)$$

$$(kinematic \ condition) \quad \frac{\partial \mathcal{E}'}{\partial t'} = w' \quad (7c)$$

$$(heat \ flux) \quad -k_L \frac{\partial T_1'}{\partial z'} = \left( h_a T_1' - \frac{\Delta T}{H_0} \mathcal{E}' \right) \quad (7d)$$

at  $z' = -H_0$

$$(no \ slip) \quad u' = w' = 0 \quad (8a)$$

$$(isothermal) \quad T_1' = 0 \quad (8b)$$

여기에서  $\mathcal{E}' = H' - H_0$ 이고 공기의 압력( $p_a'$ )은 일정하다고 가정한다.

위의 식 (7a), (7b)와 (7d)에 의하여 주어지 있는 조건들은  $z'=0$ 을 기점으로 근사될 수 있다. 즉,

$$p'|_{z'=0} = p'|_{z'=0} - \rho g \epsilon' \quad (9a)$$

$$T_1'|_{z'=0} = T_1'|_{z'=0} - \frac{\Delta T}{H_0} \epsilon' = T_1'|_{z'=0} - \Phi \epsilon' \quad (9b)$$

$$\frac{\partial \sigma}{\partial x} \Big|_{z'=0} = -\gamma \frac{\partial T_1'}{\partial x} \Big|_{z'=0} = -\gamma \left( -\Phi \frac{\partial \epsilon'}{\partial x} + \frac{\partial T_1'}{\partial x} \Big|_{z'=0} \right) \quad (9c)$$

의 관계를 얻게 되어 이들을 활용할 수 있다.  $g$ 는 중력 가속도를 나타낸다. 거리를  $H_0$ , 속도를  $vH_0$ , 압력을  $\rho v^2/H_0^2$ , 온도를  $\Delta T$ , 시간을  $H_0^2/v$ 로 무차원화하면 교란량들에 대하여 다음과 같은 무차원식들이 나오게 된다.

$$\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} = \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial \phi}{\partial x} \quad (10)$$

$$0 = \frac{\partial p}{\partial z} + \frac{\partial \phi}{\partial z} \quad (11)$$

$$-\text{Pr} w = \frac{\partial^2 T_1}{\partial z^2} \quad (12)$$

at  $z=0$

$$p = p_a + 2 \frac{\partial w}{\partial z} - S \frac{\partial^2 \epsilon}{\partial x^2} + G \epsilon \quad (13a)$$

$$\phi = \phi_0 \quad (13b)$$

$$\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} = \frac{\text{Ma}}{\text{Pr}} \left( \frac{\partial \epsilon}{\partial x} - \frac{\partial T_1}{\partial x} \right) \quad (13c)$$

$$\frac{\partial \epsilon}{\partial t} \approx w \quad (13d)$$

$$-\frac{\partial T_1}{\partial z} = \text{Bi}(T_1 - \epsilon) \quad (13e)$$

at  $z=-1$

$$u=w=0 \quad (14a)$$

$$T_1=0 \quad (14b)$$

위에서 보이는 무차원수  $S(=\sigma H_0/\rho v^2)$ 는 모세관수의 역수,  $G(=g H_0^3/v^2)$ 는 중력효과를 보이는 Archimedes수[10],  $\text{Pr}(=v/\alpha)$ 은 Prandtl수이다. 식 (11)에 보듯이  $p+\phi$ 는  $z$ 의 함수가 아니므로 식 (10)은 식 (13a)와 (13b)로부터 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} = 2 \frac{\partial}{\partial x} \frac{\partial w}{\partial z} \Big|_{z=0} - S \frac{\partial^3 \epsilon}{\partial x^3} - 3A \frac{\partial \epsilon}{\partial x} + G \frac{\partial \epsilon}{\partial x} \quad (15)$$

여기에서  $\frac{\partial \phi_0}{\partial x} \Big|_{z=0} = \frac{\partial \phi_0}{\partial H} \Big|_{z=0} \frac{\partial \epsilon}{\partial x} = -3A \frac{\partial \epsilon}{\partial x}$ 이고 무차원수  $A=A'/ (6\pi\rho v^2 H_0)$ 로 정의된다.  $A'=A_{11}-A_{12}$ 이며  $A_i$ 는 Hamaker상수로 분자  $i$ 와 분자  $j$ 간의 상호작용에너지의 인력상수에 해당하는 값인데 하첨자 1은 액체분자, 하첨자 2는 고체분자를 의미한다.

이제 연구되는 계를 정규형태(normal mode) 방법으로 해석하기 위해 교란량들이 다음과 같은 형태를 보인다고 가정한다.

$$\begin{pmatrix} u \\ w \\ T_1 \\ \epsilon \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \hat{u}(z) \\ \hat{w}(z) \\ \hat{T}_1(z) \\ \hat{\epsilon} \end{pmatrix} \exp(ikx + \beta t) \quad (16)$$

여기에서  $\hat{\cdot}$ 는 진폭함수,  $i$ 는 허수,  $k$ 는 무차원 파수,  $\beta$ 는 시간에 따른 성장률을 나타낸다.  $\beta < 0$ 이면 계는 안정하고  $\beta > 0$ 이면 계는 불안정하여 종국적으로 액막은 파열된다.

다음으로 식 (10)-(12)의 타당성을 검토할 필요가 있다. 장파의 경우  $k$ 값은 매우 작다. 따라서 식 (10)의 경우  $\left| \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right| \gg \left| \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right|$ 의 관계가 성립되는 것을 알 수 있다. 이제 위의 식 (15)는 다음과 같이 정리될 수 있다.

$$D^2 \hat{T}_1 = -\text{Pr} \{ \text{Sk}^4 + (G-3A)k^2 \} \hat{\epsilon} + 2k^2 (D^2 \hat{T}_1) \Big|_{z=0} \quad (17)$$

여기에서  $D=d/dz$ 이다. 또한 경계조건도 아래와 같이 변형된다.

$$\hat{T}_1 = D^2 \hat{T}_1 = D^3 \hat{T}_1 = 0 \quad \text{at } z=-1 \quad (18a)$$

$$D \hat{T}_1 = -\text{Bi}(\hat{T}_1 - \hat{\epsilon}) \quad \text{at } z=0 \quad (18b)$$

$$D^2 (D^2 + k^2) \hat{T}_1 = k^2 \text{Ma}(\hat{T}_1 - \hat{\epsilon}) \quad \text{at } z=0 \quad (18c)$$

이제 동적(kinematic) 조건은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\beta = -\frac{1}{\hat{\epsilon} \text{Pr}} D^2 \hat{T}_1 \Big|_{z=0} \quad (19)$$

$\hat{T}_1$ 을 5차의 다항식으로 놓고 경계조건으로부터 해를 구한 후 이를 동적 조건에서 나온 식 (19)에 대입하여 성장률  $\beta$ 를 구하면 다음과 같다.

$$\beta = \frac{k^2 \left( \frac{\text{Ma}}{20} \text{Sk}^4 - \left[ \frac{\text{Ma}}{20} (3A-G) + \frac{2\text{Ma}}{\text{Pr}} + 4S(1+\text{Bi}) \right] k^2 + \left[ 4(3A-G) + \frac{6\text{Ma}}{\text{Pr}} \right] \right)}{12(1+\text{Bi}) + \left[ \frac{3}{2} \text{Ma} + 18(1+\text{Bi}) \right] k^2 - \left[ \frac{7}{10} \text{Ma} + 2(1+\text{Bi}) \right] k^4} \quad (20)$$

### 3. 결과 및 토의

#### 3-1. 등온 액막의 경우

액막을 등온으로 가정한 경우에는  $\text{Ma}=0$ 이 되므로 성장률을 나타내는 식 (20)은 다음과 같이 간단히 나타내어진다.

$$\beta = \frac{2k^2 \{ [3A-G] - [1+\text{Bi}] \text{Sk}^2 \}}{(1+\text{Bi})(6+9k^2-k^4)} \quad (21)$$

$\text{Bi}=G=0$ 인 경우 위의 식은 Ruckenstein과 Jain[4]의 결과와 동일하게 된다. 식 (21)에서  $A < 0$ 이면  $\beta < 0$ 이 되므로 계는 안정함을 알 수 있다. 이와 같은 경우는 액체분자와 밀면 고체분자간의 친화력이 액체분자 상호간의 친화력보다 좋은 경우에 해당된다. 식 (21)에서 표면장력을 대변하는  $S$ 와 열전달능력을 대변하는  $\text{Bi}$ 는 계를 안정하게 한다.

비적삼(non-wetting) 상태에서는  $A > 0$ 이므로  $G-3A \geq 0$ 인 경우에 즉, 다음의 관계를 만족시킬 때 계는 안정하게 된다.

$$H_0 \geq \left( \frac{A'}{2\pi\rho g} \right)^{1/4} = H_{c1} \quad (22)$$

위의 식 (22)에서 파열되지 않는 액막 두께의 최저값을  $H_{c1}$ 으로 표시하였다.

계가 불안정한 경우에 성장률  $\beta$ 의 최대값  $\beta_m$ 은 식 (21)에서 파수

$k$ 가 아주 작으므로( $k \ll 1$ ) 다음과 같이 근사될 수 있다.

$$\beta_m = \frac{1}{12S} \left( \frac{3A - G}{1 + Bi} \right)^{1/2} \quad (23)$$

이에 해당되는 무차원파수  $k_m$ 은 아래와 같다.

$$k_m = \left( \frac{3A - G}{2(1 + Bi)S} \right)^{1/2} \quad (24)$$

실제 감지되는 파의 형태는 위의  $k_m$ 이고 액막의 파열에 이르는 시간은  $1/\beta_m$ 에 비례한다고 알려져 있다.

### 3-2. 비등은 액막

온도 변화를 포함하고 있는 경우에 액막 두께가 증가되면  $G$ 값이 증가하고  $A$ 값이 감소하므로 다음 식이 성립할 때에 계가 안정하다.

$$2[3A - G] + 3Ma/Pr < 0 \quad (25)$$

위 식은 식 (20)에서 끌어낸 식으로 본 연구에서 고려한 교란의 형태가 장파이므로( $k \ll 1$ ) 가능한 것이다. 이 식은 Marangoni-Bénard대류가 발생되기 전인  $Ma < 80$ 에서는 중력장이 안정화에 기여하게 된다는 것을 보여준다. 이에 해당되는 액막 두께  $H_0$ 는 다음 영역에 있게 된다.

$$H_{C2}' = (3\gamma\Delta T/2\rho g)^{1/2} < H_0 < C_0\mu\alpha/\gamma\Delta T = H_{C3}' \quad (26)$$

여기에서  $H_{C2}'$ 은 장파형태의 교란으로부터 액막이 안정화되는 두께이다. 또한  $C_0$ 는 임계 Marangoni수의 값으로  $C_0 \geq 80$ 이며  $Bi$ 값이 커지면 증가하게 된다[9]. 액막두께  $H_0$ 가 증가하게 되어  $H_0 > H_{C3}'$ 이 되면 Marangoni-Bénard대류가 발생하게 되고 더욱 더  $H_0$ 가 커지게 되면 Rayleigh-Bénard대류가 발생하게 된다.  $H_{C3}'$ 은 Marangoni-Bénard대류가 발생하는 두께를 나타내며 이후에 나타나는 Rayleigh-Bénard대류 발생두께는  $H_{C4}'$ 로 표시한다.  $Bi \rightarrow \infty$ 인 경우는 계면이 등온이 되어 Marangoni-Bénard대류는 발생하지 않게 된다. 이 경우 부력에 의한 자연대류는  $Ra \geq 1101$ 인 영역에서 발생하게 된다. 자연대류의 발생시에는 앞에서 살펴 본 윤활유동 근사에 따른 장파이론은 더 이상 유효하지 않다. 그러나 밀면이  $Bi \rightarrow 0$ 인 조건, 즉 밀면의 열전도가 나쁠 경우, Pearson[11]은 Marangoni-Bénard대류가 장파의 형태로  $Ma=48$ 에서 발생한다는 것을 밝혔다. 따라서  $Ra \rightarrow 0$ 인 경우에  $Ma \leq 48$ 인 영역에서 장파이론이 어느 정도 타당성이 있다고 말할 수 있다.

액막의 두께  $H_0 \leq H_{C1}'$ 인 경우에는  $Ma \approx 0$ 이므로 3-1절에 설명되어 있는 등온하의 액막 불안정성에 대한 결과를 적용할 수 있고  $H_{C1}' < H_0 < H_{C2}'$ 인 경우에는  $Ma$ 가 불안정화 요인으로 작용하게 된다. 위와 같은 매개인자들의 영향을 알아보기 위해 실제 계에서 물과 에탄올을 중심으로 매개인자들을 변화시켜가면서 성장률의 변화를 검토하였다.

### 3-3. 예시

본 연구에서 사용된 물과 에탄올의 물성들을 요약하면 Table 1과 같다[6, 12]. 공기의 벌크온도는 298 K로 고정하였다. Burelbach 등[6]의 조건과 동일하게 액막 밀면의 온도는 표에 보이는 바와 같이 1기압에서 물의 비점 373 K, 에탄올의 비점 352 K로 하였다. 에탄올의 경우 온도의 변화에 따른 표면장력 변화를  $\gamma$ 값이 커서 밀면의 온도가 320 K인 경우에 대하여도 검토하였다.  $A'$  값은  $10^{-20}$  J로 고정하였다[4].  $A'$  값이 작아지면 식 (20)에서 보이듯이 계는 안정하게 되며 액막두께가 100 nm 이하일 때 이 효과는 크다. 등온 가열하에서 공기층의 대류 열전달계수  $h_a$ 는  $Ra > 10^9$ 인 경우에 다음 식으로부터

Table 1. Material properties used at 1 atm[6, 12]

Material	Water (373 K)	Ethanol (352 K)	Ethanol (320 K)
Density $\rho$ [kg m <sup>-3</sup> ]	$9.6 \times 10^2$	$7.5 \times 10^2$	$7.7 \times 10^2$
Dynamic viscosity $\nu$ [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]	$3.0 \times 10^{-7}$	$5.0 \times 10^{-7}$	$9.49 \times 10^{-7}$
Conductivity $k$ [Jm <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]	$6.8 \times 10^{-1}$	$1.7 \times 10^{-1}$	$1.63 \times 10^{-1}$
Thermal diffusivity $\alpha$ [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]	$1.7 \times 10^{-7}$	$8.8 \times 10^{-8}$	$7.64 \times 10^{-8}$
Surface tension $\sigma$ [Nm <sup>-1</sup> ]	$5.9 \times 10^{-2}$	$2.0 \times 10^{-2}$	$2.04 \times 10^{-2}$
$\gamma = -\frac{d\sigma}{dT}$ [Nm <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]	$1.8 \times 10^{-4}$	$9 \times 10^{-4}$	$9 \times 10^{-4}$

Table 2. Characteristic liquid depth

Characteristic liquid depth	Water $\Delta T_{overall}=75$ K	Ethanol $\Delta T_{overall}=54$ K	Ethanol $\Delta T_{overall}=22$ K
$H_{C1}'$	$6.4 \times 10^{-1}$ $\mu$ m	$6.78 \times 10^{-1}$ $\mu$ m	$6.77 \times 10^{-1}$ $\mu$ m
$H_{C2}'$	$1.66 \times 10$ $\mu$ m	$2.66 \times 10^2$ $\mu$ m	$8.41 \times 10$ $\mu$ m
$H_{C3}'$	$1.94 \times 10^2$ $\mu$ m	$4.49 \times 10$ $\mu$ m	$1.03 \times 10^2$ $\mu$ m
$H_{C4}'$	2.31 mm	1.16 mm	1.75 mm

Table 3. Dimensionless parameters

Liquid	Water $\Delta T_{overall}=75$ K		Ethanol $\Delta T_{overall}=54$ K		Ethanol $\Delta T_{overall}=22$ K	
$H_0$	10 nm	10 $\mu$ m	10 nm	10 $\mu$ m	10 nm	10 $\mu$ m
$A$	$6.1 \times 10^{-4}$	$6.1 \times 10^{-7}$	$2.8 \times 10^{-4}$	$2.8 \times 10^{-7}$	$7.7 \times 10^{-5}$	$7.7 \times 10^{-8}$
$Ma$	$2.0 \times 10^{-7}$	$2.0 \times 10^{-1}$	$4.0 \times 10^{-6}$	4.0	$7.6 \times 10^{-7}$	$7.6 \times 10^{-1}$
$Ra$	$2.2 \times 10^{-19}$	$2.2 \times 10^{-7}$	$3.7 \times 10^{-18}$	$3.7 \times 10^{-7}$	$7.1 \times 10^{-19}$	$7.1 \times 10^{-7}$
$S$	6.8	$6.8 \times 10^3$	1.0	$1.0 \times 10^3$	$2.9 \times 10^{-1}$	$2.9 \times 10^2$
$Bi$	$7.4 \times 10^{-8}$	$7.4 \times 10^{-5}$	$2.8 \times 10^{-7}$	$2.8 \times 10^{-4}$	$2.1 \times 10^{-7}$	$2.1 \times 10^{-4}$
$G$	$1.1 \times 10^{-10}$	$1.1 \times 10^{-1}$	$3.9 \times 10^{-11}$	$3.9 \times 10^{-2}$	$1.1 \times 10^{-11}$	$1.1 \times 10^{-2}$
$Pr$	1.76		5.68		12.4	

구할 수 있다[13].

$$h_a = 1.24 (\Delta T_{overall} - \Delta T)^{1/3} \approx 1.24 \Delta T_{overall}^{1/3} \quad (27)$$

여기서  $\Delta T_{overall}$ 은 액막 밀면과 공기의 벌크 온도의 차이이며  $h_a$ 의 단위는  $Wm^{-2}K^{-1}$ 이다. 또한 액막 상하의 온도차  $\Delta T$ 는 다음 상관식에 의하여 구할 수 있다.

$$\Delta T = \Delta T_{overall} Bi / [1 + Bi] \quad (28)$$

Table 2와 Table 3에 식 (22)에서 식 (26)까지에서 정의된 특성길이들과 무차원수들을 구하여 나타내었다. 본 연구에서 다루고 있는 계에서는 Table 3에 보인 바와 같이 액막두께가 10  $\mu$ m인 경우에도 Biot수 값이 매우 작다. 따라서 본 연구의 대상이 되는 두께 영역에서는 Biot수의 영향은 매우 작고 식 (28)에서 액막 상하의 온도차는  $\Delta T = Bi \Delta T_{overall}$ 로 근사될 수 있다. 이 액막두께에서는  $\Delta T$  또한 매우 작으므로  $Ra$ 값도 매우 작아 부력에 의한 자연대류 유발도 기대할 수 없다. 그러나 액막의 두께가 100  $\mu$ m보다 커지면 자연대류가 발생할 수 있다.

액막두께를 변화시키면서 물에 대하여 식 (20)에 따른 성장률  $\beta$ 를 도시하면 Fig. 2와 같다.  $H_0$  값이 증가함에 따라  $A$ 값이 감소하고  $G$ 값이 증가하여 최대 성장률  $\beta_m$ 값이 일단 감소하나  $Ma$ 값이 증가함으로 인해 다시  $\beta_m$ 값이 증가하다가  $G$ 값이 커져  $\beta \leq 0$ 인 안정한 영역으로 변함을 보여주고 있다.  $H_0$  값이 작은 경우 Fig. 3과 같이 Ruckenstein과 Jain[4]의 결과가 일치하게 되나,  $H_0$  값이 커지면 Fig. 4에서 보듯이 그들의 결과로부터 벗어나게 된다.

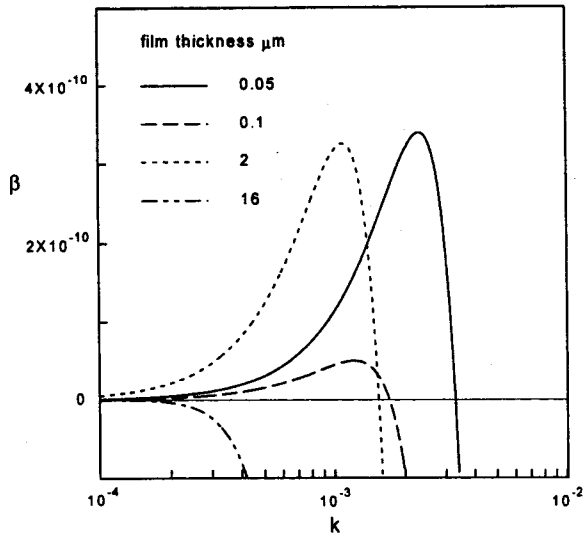


Fig. 2. Dimensionless temporal growth rate  $\beta$  vs. wave number  $k$  with variation of film thickness  $H_0$  for water.

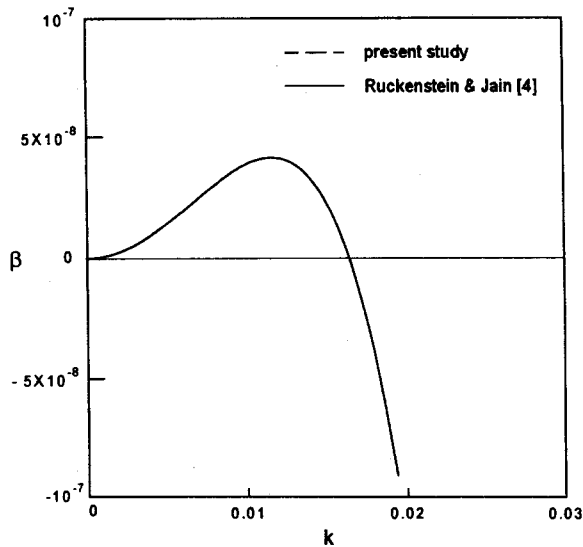


Fig. 3.  $\beta$  vs.  $k$  with  $H_0 = 0.01 \mu\text{m}$  for water.

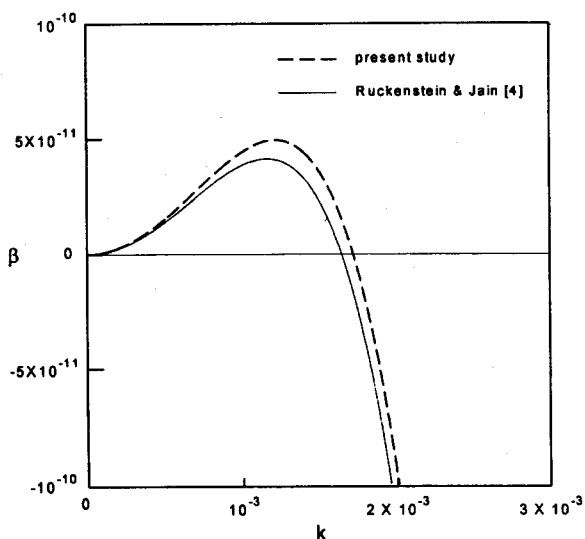


Fig. 4.  $\beta$  vs.  $k$  with  $H_0 = 0.1 \mu\text{m}$  for water.

표면장력 변화에 의한 대류는  $Ma=80$ (등온-일정열속조건), 부력에 의한 대류는  $Ra=669$ (등온-일정열속조건)를 기준으로 계산하였다. 무차원수들은 액막의 두께  $H_0$ 의 영향을 대비시키기 위하여 10 nm와 10  $\mu\text{m}$ 인 경우에 대하여 구하였다. Table 2의 결과를 보면 바닥면의 온도가 373 K인 물과 320 K인 에탄올은  $H'_{c1} < H'_{c2} < H'_{c3} < H'_{c4}$ 의 순서로 즉 분자 상호작용이 주도적인 불안정한 영역( $H'_0 \leq H'_{c1}$ ), 중력장이 계를 안정화시키는 영역( $H'_{c1} < H'_0 < H'_{c2}$ ), Marangoni-Bénard 대류가 발생되는 영역( $H'_0 > H'_{c2}$ ), Rayleigh-Bénard 대류가 주도적인 영역( $H'_0 > H'_{c4}$ )으로 구분됨을 알 수 있다. 그러나 밀면의 온도가 352 K인 에탄올의 경우에는  $H'_0 > H'_{c3}$ 인 특이한 결과를 보이고 있다. 이는 이러한 조건하에서는 안정화된 영역이 없음을 뜻하는데 액막 밀면이 에탄올과 비적심(non-wetting) 상태이므로( $A = 10^{-20} \text{J} > 0$ ) 352 K 에탄올의 경우에  $H'_0 < H'_{c3}$  영역에서 성장률  $\beta < 0$ 인 조건이 존재하지 않음을 의미한다. 이는 관계식 (25)에서 보여주듯이 온도차 증가에 따른  $G$ 값의 증가보다  $Ma$ 값의 증가가 크기 때문으로 이와 같은 영향은 Table 3에서 쉽게 짐작할 수 있다. 관계식 (25)가 성립되지 않을 경우 안정된 영역이 없음을 대변한다. 이상의 결과를 그림으로 나타낸 것이 Fig. 5와 6이다. 실

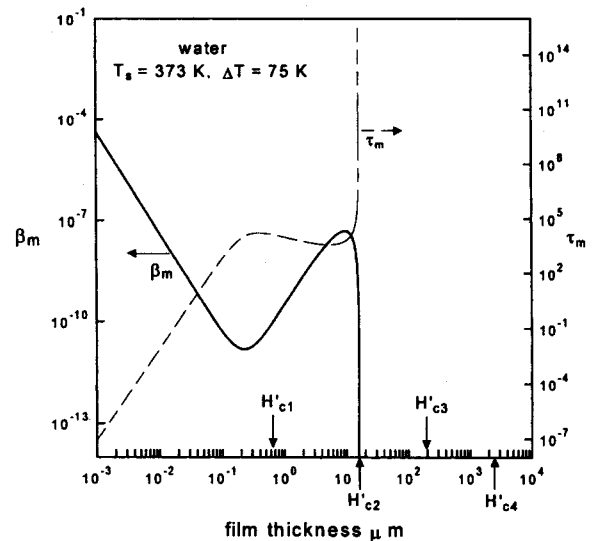


Fig. 5. Maximum growth rate and estimated rupture time vs. film thickness for water.

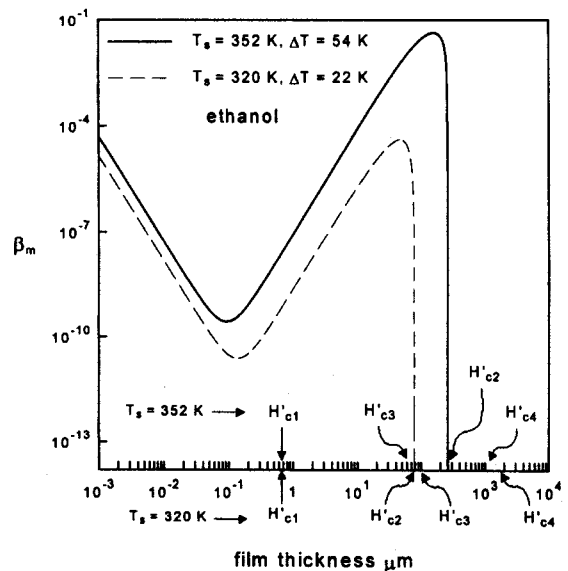


Fig. 6. Maximum growth rate vs. film thickness for ethanol.

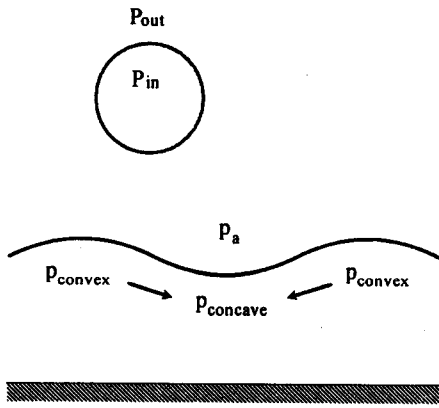


Fig. 7. Schematic illustration on possible decay of short waves.

험결과와 비교하기 위하여는 일반적으로  $\beta_m$  값이 중요하므로 이를 도식한 것으로 특징적인 액막 길이  $H_{C1}$ ,  $H_{C2}$ ,  $H_{C3}$ ,  $H_{C4}$ 와 특히 물의 경우에는 액막과 열에 이르는 시간을 대변하는 시간상수  $\tau_m (=1/\beta_m)$ 이 표시되어 있다.

액막은 중력, 점도, 표면장력에 의해서 안정화된다. 그 예로 식 (23)에서  $\beta_m \propto 1/S$ 이며 또한 무차원수들로부터 점도만을 끄집어 내면  $\beta_m \propto 1/\nu$ 임을 알 수 있다. 중력은 모든 파장에 대해서 점도는 파장이 매우 긴 쪽의 안정화에, 그리고 표면장력은 상대적으로 파장이 짧은 쪽의 안정화에 주로 영향을 끼친다. 특히 파장이 짧은 쪽의 교란이 성장하지 못하고 소멸하는 것은 다음의 간단한 Young-Laplace 식[14]으로 쉽게 이해할 수 있다.

$$p_m = p_{out} + 2\sigma/r \quad (34)$$

여기서  $p_m$ 은 Fig. 7에 나타낸 바와 같이 오목한 부분의 압력이고,  $p_{out}$ 은 볼록한 부분의 압력이다. 같은 진폭을 갖는 교란을 생각할 때 파장의 길이가 짧아질수록 식 (34)에서 반경( $r$ )이 작아지는 것에 해당하므로 오목한 쪽의 압력이 그 만큼 더욱 커지게 된다. Fig. 7에서 외부공기의 압력( $p_a$ )이 1기압으로 일정한 경우를 생각하면  $p_{convex} > 1$  기압  $> p_{concave}$ 의 결과를 가져오게 되고, 따라서 파장이 짧아질수록 압력차( $p_{convex} - p_{concave}$ )가 커지게 되므로 그림에서 화살표방향으로의 흐름이 커져서 생성된 파의 소멸이 빠른 속도로 진행된다. 따라서 전반적으로 무차원파수  $k \ll 1$ 인 장파해석의 타당성이 어느 정도 확인되었다고 결론지을 수 있다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 수평판 위에 놓여 있는 액막에 장파형태의 교란이 도입되었을 때 그 액막의 안정성을 액막의 두께를 변화시켜가면서 조사하였다. 물과 에탄올을 대상으로 수 nm에서 수 mm에 이르는 두께영역에서 조사하였는데 두께가 얇은 경우에는 장파형태의 교란이 성장을 하나, 두께가 두꺼워짐에 따라 액막이 장파형태의 교란으로부터 안정해지는 것을 알 수 있었다.

장파형태의 교란은 크게 분자간의 인력과 열모세관 현상의 두 가지 요인으로 인해 성장을 한다. 액막 두께가 매우 얇은 경우에는 분자간의 인력이 교란의 성장에 가장 중요한 요인으로 작용하게 되며, 액막이 두꺼워짐에 따라 중력장이 영향을 미치기 시작하여 계를 안정화시키므로써 장파형태의 교란이 성장하지 못하고 소멸하게 된다. 그러나 어느 두께이상이면 Marangoni-Bénard대류가 발생하게 되고 이어서 Rayleigh-Bénard대류가 발생하게 된다.

## 감 사

본 연구를 지원하여 준 서울대학교 공과대학 교육연구재단, 특히 서울대학교 화학공학과 동창회원들께 깊은 사의를 표합니다.

## 사용기호

- A : dimensionless number in Eq. (15),  $A'/(6\pi\rho\nu^2H_0)$  [-]
- $A_{ij}$  : Hamaker constant for interaction between molecules of type i and j [J]
- $A'$  :  $A_{11} - A_{12}$  [J]
- b : dimensionless group,  $-(1/\rho)(\partial\rho/\partial T)\Delta T$  [-]
- $b'$  : thermal expansion coefficient [ $K^{-1}$ ]
- Bi : Biot number,  $h_a H_0/k_L$  [-]
- D : differential operator with respect to z,  $d/dz$
- G : Archimedes number,  $gH_0^3/\nu^2$  [-]
- g : gravitational acceleration constant [ $ms^{-2}$ ]
- H : dimensionless film thickness,  $H_0'/H_0$  [-]
- $H'$  : film thickness [m]
- $h_a$  : convective heat transfer coefficient [ $Jm^{-2}s^{-1}K^{-1}$ ]
- $H_0$  : initial film thickness [m]
- k : wave number of perturbation [-]
- $k_L$  : thermal conductivity of liquid [ $Jm^{-1}s^{-1}K^{-1}$ ]
- Ma : Marangoni number,  $\gamma\Delta TH_0/(\rho\nu\alpha)$  [-]
- p : dimensionless dynamic pressure,  $p'/( \rho\nu^2/H_0^2)$  [-]
- $p'$  : dynamic pressure [ $Nm^{-2}$ ]
- Pr : Prandtl number,  $\nu/\alpha$
- Ra : Rayleigh number,  $gb'\Delta TH_0^3/(\nu\alpha)$
- S : dimensionless surface tension,  $\sigma H_0/(\rho\nu^2)$  [-]
- T : temperature [K]
- $T_a$  : ambient bulk temperature [K]
- $T_b$  : temperature of below boundary of liquid film [K]
- $T_1$  : dimensionless perturbed temperature [ $T_1'\Delta T^{-1}$ ]
- $T_1'$  : perturbed temperature [K]
- $\Delta T$  : temperature difference across liquid film [K]
- $\Delta T_{overall}$  :  $T_s - T_g$  [K]
- t : dimensionless time,  $t'/(H_0'^2\nu^{-1})$  [-]
- $t'$  : time [s]
- u, w : dimensionless velocity components,  $u'/( \nu/H_0')$ ,  $w'/( \nu/H_0')$  [-]
- $u'$ ,  $w'$  : velocity components [ $ms^{-1}$ ]
- V : volume [ $m^3$ ]
- x, z : dimensionless position in Cartesian coordinates,  $x'/H_0'$ ,  $z'/H_0'$  [-]
- $x'$ ,  $z'$  : position in Cartesian coordinates [m]

## 그리스 문자

- $\alpha$  : thermal diffusivity [ $m^2s^{-1}$ ]
- $\beta$  : growth rate [-]
- $\beta_m$  : maximum growth rate [-]
- $\gamma$  : negative value of surface tension variation with temperature [ $Nm^{-1}K^{-1}$ ]
- $\varepsilon$  : dimensionless perturbation of film thickness,  $\varepsilon'/H_0'$  [-]
- $\varepsilon'$  : perturbation of film thickness [m]

- $\mu$  : viscosity [ $\text{kg m}^{-1}\text{s}^{-1}$ ]  
 $\nu$  : kinematic viscosity [ $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ]  
 $\sigma$  : surface tension [ $\text{Nm}^{-1}$ ]  
 $\Phi$  : initial temperature distribution [ $\text{Km}^{-1}$ ]  
 $\phi$  : dimensionless interaction potential per unit volume at point in the liquid,  $\phi' / (\rho v^2 / H_0^2)$  [-]  
 $\phi_0$  : dimensionless interaction potential per unit volume at free surface of liquid [-]  
 $\phi'$  : interaction potential per unit volume at point in the liquid [ $\text{J m}^{-3}$ ]

#### 하첨자

- 1 : liquid  
 2 : solid

#### 상첨자

- $\wedge$  : amplitude function for perturbation quantity

### 참고문헌

1. Deryagin, B. V.: *Colloid J. U. S. S. R.*, **17**, 191(1955).
2. Scheludko, A.: *Adv. Colloid Interface Sci.*, **1**, 391(1967).
3. Vrij, A.: *Disc. Faraday Soc.*, **42**, 23(1966).
4. Ruckenstein, E. and Jain, R. K.: *J. Chem. Soc. Faraday Trans. II*, **70**, 132(1974).
5. Williams, M. B. and Davis, S. H.: *J. Colloid and Interface Sci.*, **90**(1), 220(1982).
6. Burelbach, J. P., Bankoff, S. G. and Davis, S. H.: *J. Fluid Mech.*, **195**, 463(1988).
7. Reiter, G.: *Langmuir*, **9**, 1344(1993).
8. Berg, J. C., Acrivos, A. and Boudart, M.: *Adv. Chem. Eng.*, **6**, 61 (1966).
9. Garazo, A. N. and Velarde, M. G.: *Phys. Fluids*, **A3**, 2295(1991).
10. Goussis, D. A. and Kelly, R. E.: *Int. J. Heat Mass Transfer*, **33** (10), 2237(1990).
11. Pearson, J. R. A.: *J. Fluid Mech.*, **4**, 489(1958).
12. David, R. L.: "CRC Handbook of Chemistry & Physics", CRC Press, New York(1994).
13. Bennett, C. O. and Myers, J. E.: "Momentum, Heat, and Mass Transfer", McGraw-Hill, New York(1982).
14. Miller, C. A. and Neogi, P.: "Interfacial Phenomena", Marcel Dekker, New York(1985).