



저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.



비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.



변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 [이용허락규약\(Legal Code\)](#)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

[Disclaimer](#)

2022년 8월
석사학위 논문

3 오메가 방법을 이용한
나노유체 분산안정성 평가를 위한
실험적 연구

조선대학교 대학원

기계공학과

김호성

3 오메가 방법을 이용한
나노유체 분산안정성 평가를 위한
실험적 연구

**Experimental study of stability assessment of nanofluid stability
by using the 3 omega method**

2022년 8월 26일

조선대학교 대학원

기계공학과

김호성

3 오메가 방법을 이용한
나노유체 분산안정성 평가를 위한
실험적 연구

지도교수 오 동 욱

이 논문을 공학석사 학위신청 논문으로 제출함

2022년 4월

조선대학교 대학원

기 계 공 학 과

김 호 성

김호성의 석사학위 논문을 인준함

위원장 조선대학교 교수 조 흥 현 (인)

위 원 조선대학교 교수 오 동 욱 (인)

위 원 조선대학교 교수 박 정 수 (인)

2022년 05월

조선대학교 대학원

CONTENTS

CONTENTS	i
LIST OF FIGURES	iv
LIST OF TABLES	ix
NOMENCLATURE	x
ABSTRACT	xiii
제 1 장 서론	1
제 1 절 연구 배경	1
1. 3ω 방법	1
2. 나노유체	2
제 2 절 기존 연구	3
제 3 절 연구 목표	5
제 2 장 3ω 방법의 소개 및 이론	7
제 1 절 3ω 방법의 소개	7
제 2 절 단방향 열전달 및 접촉열저항	8
1. 단방향 열전달	8

2. 접촉열저항	12
제 3 절 양방향 열전달	15
제 4 절 열전달 모델링	18
제 3 장 센서 제작 및 실험방법	23
제 1 절 센서 제작	23
1. 센서 제작	23
2. 히터의 폭과 두께 측정	27
3. 온도에 따른 4 wire 저항 측정	28
제 2 절 절 나노유체 제조	29
제 3 절 실험방법	31
1. 기판과 액체의 열전도도 측정	31
2. 나노유체 침전 실험	32
제 4 장 기판과 액체의 열전도도 측정 실험	33
제 1 절 절 기판의 열전도도 측정	33
제 2 절 절 액체의 열전도도 측정	35
제 3 절 절 히터의 두께와 접촉열저항 분석	37
제 5 장 Al_2O_3 나노유체 분산안정성 평가 실험	46

제 1 절 DI-water, 나노유체 침전 비교	46
제 2 절 분산 방법에 따른 분산안정성 평가	48
제 3 절 분산 시간에 따른 분산안정성 평가	51
제 4 절 무차원화	54
제 5 절 Al ₂ O ₃ 나노유체 stability constant 평가	59
제 6 절 표준물질 측정	63
제 6 장 결론	69
REFERENCES	71

LIST OF FIGURES

Figure 2-1 Schematic diagrams of microheater deposited on substrate and thermal resistances between interface and substrate 10

Figure 2-2 Cross-sectional schematic diagram of microheater and substrate (a) structure without considering microheater thickness and (b) structure considering microheater thickness 11

Figure 2-3 Cross-sectional schematic diagram of microheater and substrate (a) structure including interfacial thermal resistance between microheater and substrate, without considering microheater thickness and (b) structure including microheater thickness and interfacial thermal resistance 14

Figure 2-4 Schematic of microheater on substrate with an interface in between 14

Figure 2-5 (a) Schematic of a typical 3ω sensor, to measure the thermal conductivity of the substrate. (b) side view of 3ω sensor comprises a microheater line with dimensions of $b = 5 \text{ um}$ width $l = 1450 \text{ um}$ length, 2000 \AA thickness 16

Figure 2-6 (a) Fluid is placed on top of the 3ω sensor to measure the thermal conductivity of the fluid (b) side view showing the bidirectional heat transfer from the microheater to the fluid and substrate 17

Figure 2-7 Schematic of sample on the substrate with a microheater in between 17

Figure 2-8 (a) The temperature amplitude of the nanofluid obtained by dispersing DI-water and Al₂O₃ 200 nm in 0.1, 0.2, 0.3 vol. % in DI-water, and the schematic diagram of the nanofluid, 13 hours after the experimental time (b) The average particle size of 200, 400, and 800 nm are 0.2 vol. % in DI-water, and the schematic diagram of the nanofluid after 1 hours of experimental time 22

Figure 3-1 3 ω sensor manufacturing process 24

Figure 3-2 Microheater on (a) EXG glass and (b) polyimide film fabricated by semiconductor fabrication process 25

Figure 3-3 (a) Picture of PDMS package attached to 3 ω sensor, (b) Picture of nanofluid injected inside the PDMS package 26

Figure 3-4 AFM 2D image of (a) EXG glass 3 ω sensor and (b) polyimide 3 ω sensor 27

Figure 3-5 Relationship between temperature and resistance of the (a) EXG glass, 3 ω sensor heater and (b) polyimide 3 ω sensor heater 28

Figure 4-1 Temperature amplitude of EXG glass and polyimide film measured from frequency 1 Hz to 8000 Hz 34

Figure 4-2 Thermal penetration depth of EXG glass and polyimide film

	from frequency 1 Hz to 8000 Hz	34
Figure 4-3	Temperature amplitude of DI-water measured from frequency 1 Hz to 8000 Hz	36
Figure 4-4	Temperature amplitude of ethylene glycol measured from frequency 1 Hz to 8000 Hz	36
Figure 4-5	Ratios of temperature amplitude and phase lag based on interfacial thermal resistance calculated using theoretical equations and Equation (2.6) (a) Temperature amplitude of EXG glass substrate and (b) phase lag of EXG glass substrate	40
Figure 4-6	Ratios of temperature amplitude and phase lag based on interfacial thermal resistance calculated using theoretical equations and Equation (2.6) (a) Temperature amplitude of polyimide substrate and (b) phase lag of polyimide substrate	41
Figure 4-7	Ratios of temperature amplitude and phase lag based on interfacial thermal resistance calculated through COMSOL analysis and Equation (2.6) (a) Temperature amplitude of EXG glass substrate and (b) phase lag of EXG glass substrate	42
Figure 4-8	Ratios of temperature amplitude and phase lag based on interfacial thermal resistance calculated through COMSOL analysis and Equation (2.6) (a) Temperature amplitude of polyimide substrate and (b) phase lag of polyimide substrate	43

- Figure 4-9 Comparison among experimental, theoretical, and analytical values; thermal conductivity obtained using least-squares method (a) Temperature amplitude of EXG glass substrate and (b) phase lag of EXG glass substrate 44
- Figure 4-10 Comparison among experimental, theoretical, and analytical values; thermal conductivity obtained using least-squares method (a) Temperature amplitude of polyimide substrate and (b) phase lag of polyimide substrate 45
- Figure 5-1 The experimental value of temperature amplitude of DI-water, nanofluid over time and The theoretical value of temperature amplitude of nanofluid with a particles size of 800 nm 47
- Figure 5-2 The experimental value of temperature amplitude of nanofluids dispersed 120 min using stirrer, stirrer and ultrasonic bath over time for (a) 0.1 vol. %, (b) 0.2 vol. % and (c) 0.3 vol. % 50
- Figure 5-3 The experimental value of temperature amplitude of nanofluid dispersed for 5, 15, 30, 60, 120 min using stirrer and ultrasonic bath over time (a) 0.1 vol. %, (b) 0.2 vol. % and (c) 0.3 vol. % 53
- Figure 5-4 (a) The graph of non-dimensional thermal amplitude using Equation (4.1) and (b) the graph of non-dimensional thermal amplitude and time using Equation (4.1) and (4.2) 56
- Figure 5-5 (a) Graph calculated by substituting any number 0.5, 0.125,

0.000315 using Equation (4.3) (b) The relationship between $(\Delta T_t - \Delta T_{t-1000})/\Delta T_{t-1000}$ and time 57

Figure 5-6 Stability constant according to dispersion time 58

Figure 5-7 (a) Stability constant measurement of nanofluid dispersed using a stirrer (b) Stability constant measurement graph of nanofluid dispersed using a stirrer and ultrasonic bath (c) Stability constant according to the waiting time 62

Figure 5-8 Silica bead 1000 nm concentration 0.5, 0.25, 0.1 vol. % (a) theoretical value, (b) experimental value, (c) relationship between Thickness and Time of Particle Layer 66

Figure 5-9 Silica bead 500 nm concentration 0.5, 0.25, 0.1 vol. % (a) theoretical value, (b) experimental value 67

Figure 5-10 (a) Polystyrene bead 1 um, 1 vol. % experimental value, (b) glass bead 2 um, 1 vol. % experimental value and theoretical value 68

LIST OF TABLES

Table 3-1 Nanofluid manufacturing method	30
Table 4-1 Thermal properties of EXG glass, polyimide and Au heater	39
Table 5-1 Thermal properties of silica, polystyrene and glass bead	64

NOMENCLATURE

Roman symbols

- b : half width of microheater [m]
 C_p : specific heat capacity [kJ/kg/K]
 d : particle size [m]
 f : frequency [1/s]
 g : gravitational acceleration [m^2/s]
 i : interface
 j : layer
 k : thermal conductivity [W/m/K]
 K_n : modified Bessel function
 l : length of microheater [m]
 \dot{Q} : heat generation [W]
 q : complex thermal wave number
 R : resistance [Ω]
 r : radial distance [m]
 r_0 : radius of heater [m]
 T : temperature [K]
 t : time [s]
 V : volume of nanofluid [m^3]
 v : sedimentation velocity [m/s]

Greek symbols

- α : thermal diffusivity [m^2/s]
 ΔT : temperature amplitude [K]
 ∂ : small amount
 ρ : density [kg/m^3]
 ϕ : phase lag [$^\circ$]
 μ : viscosity [$\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2$]
 ψ : nanoparticle concentration [vol. %]
 ω : angular velocity [rad/s]

Subscripts

- bf : base fluid
 con : contact
 f : fluid
 h : heater
nano : nanofluid
 p : particle
 pl : particles layer
 r : radial coordinate
 r_0 : heater surface
 s : substrate

Abbreviations

- AC : Alternating Current
CNT : Carbon nanotube
DC : Direct Current
DI : Deionized
S : Stability constant
SEM : Scanning Electron Microscope
TEM : Transmission Electron Microscope
TPD : Thermal Penetration Depth

ABSTRACT

Experimental study of stability assessment of nanofluid stability by using the 3 omega method

HO-SUNG KIM

Advisor : Prof. DONG-WOOK OH.

Department of Mechanical Engineering

Graduate School of Chosun University

The nanofluid is a suspension in which nanoparticles are uniformly dispersed in a working fluid such as DI-water, ethylene glycol and oil. It is well known that the thermal conductivity of the fluid can be improved by adding nanoparticles with high thermal conductivity to the working fluid. For more than 20 years, many studies have been carried out around the world to increase the thermal conductivity of nanofluids. However, high concentrations of nanofluids usually have low sedimentation stability because they are aggregated and sedimented. Many physical and chemical methods are being attempted to increase the dispersion stability of nanofluid at high concentration, but technology capable of ensuring dispersion stability at high concentration to the extent that heat transfer performance is significantly improved has not been developed. In addition, even if such technology is developed, the method of quantitatively evaluating the sedimentation stability of nanofluids at high concentrations is limited.

Currently, methods for evaluating dispersion stability of nanofluids include UV-Vis spectrophotometer, Zeta potential, sediment photograph capturing, electron microscopy

(TEM, SEM), light scattering method, and sedimentation balance method. These measurement methods developed analysis principles based on the unique properties of particles, such as particle scattering intensity, electrophoresis velocity, and gravity sedimentation. But these methods are nanoparticles, concentration, concentration range type of fluid can be distributed according to the stability it is difficult to measure. Since there are many limitations to existing methods, a new analysis theory is needed that can measure sedimentation stability regardless of high concentration and optical properties.

3 ω method measures thermal conductivity at the bottom of the specimen, so it has an advantage in identifying the agglomeration and sedimentation characteristics of nanofluids. And since the 3 m method has a high spatial resolution, the temperature amplitude can be quantitatively measured with just one drop of nanofluid. In particular, unlike existing methods, since it is a method using conductive heat transfer rather than an optical characteristic, it is possible to measure high concentration, absorbance material, and transparent samples.

So, this paper thermal characterized a particle with a size to precipitate at a constant speed to form a layer with a constant porosity. To find out how the concentration and particle size affect the temperature amplitude with the designed modeling, nanofluids with Al₂O₃ 200 nm particles with 0.1, 0.2, and 0.3 vol. % concentrations and Al₂O₃ 200, 400, and 800 nm particles with 0.2 vol. % were analyzed. In addition, experiments were conducted by dispersion method, concentration, and dispersion time to compare sedimentation stability. The average particle size and porosity were estimated by comparing and analyzing the experimental value and the theoretical value. In addition, for quantitative comparison, the time and the temperature amplitude were non-dimensional, and each experimental value was derived with one constant, the stability constant (S). Through this, sedimentation stability was evaluated.

제 1 장 서론

제 1 절 연구배경

1. 3ω 방법

최근 다양한 물성을 가진 신소재 개발이 활발하게 이루어지고 있다. 새롭게 개발된 소재가 공학적인 설계와 제작 과정을 거쳐 실제 제품으로 되기까지, 열전도도와 같은 열물성의 정확한 분석이 요구되고 있다. 하지만 기존의 열물성 측정 기술로는 소재의 형상, 내부 구조 및 열전도도 범위 등에 따라 정확한 열전도도 측정이 제한될 수 있다. 소재 및 시편에 따라 높은 공간 및 시간 분해능을 가진 열전도도 측정 방법이 필요할 수 있다. 재료의 열전도도를 측정하는 방법에는 다양한 방법들이 있다. 그중 3ω 방법은 측정범위가 ~ 수 μm 으로 국소부위의 열전도도를 측정할 수 있다. 그리고 실험 시간이 ~ 수 ms로 이른 시간 안에 측정할 수 있다. 또한, 3ω 방법은 기체부터 비금속까지 넓은 열전도도 측정범위를 가지고 있다. 이러한 이유로 3ω 방법이 측정하기 어려운 시편의 열분석에 널리 사용되고 있다 [1].

3ω 방법은 1990년 Cahill에 의해 처음 제안되었다 [2]. 이 방법은 기판에 증착된 미소히터의 온도진폭을 측정하여 기판의 열전도도를 구하는 방법이다. Cahill이 제안한 3ω 방법은 기판 혹은 박막의 열전도도를 정확하게 측정할 수 있다. 하지만, Cahill이 제안한 방법은 측정하고자 하는 물질 위에 미소히터를 증착하여야 했으므로, 모든 시편의 열전도도 측정할 수는 없었다. 이러한 이유로 최근에는 양방향 열전달을 이용하여, 미리 제작된 3ω 센서 위에 시편을 올려놓고 측정하는 방법이 제안되었다. 이와 같은 양방향 열전달 3ω 방법을 통하여 다양한 종류에 시편들의 열분석이 가능해졌다 [3-6]. 이를 통해 시편이 고체, 액체, 기체 상관없이 열전도도 측정이 가능하다.

2. 나노유체

나노유체는 DI-water, ethylene glycol, oil과 같은 작동유체에 금속 입자를 균질하게 분산한 현탁액이다. 작동유체에 열전도도가 높은 나노입자를 첨가하여 작동유체의 열전도도를 높일 수 있다. [7]. 전 세계 열전달 관련 산업 및 연구계에서 지난 30여 년 동안 나노유체의 열전달에 관한 연구가 활발하게 진행되고 있다 [8]. 나노유체의 열전도도를 높일 수 있는 가장 쉬운 방법은 열전도도가 높은 나노입자를 분산하거나 질량비를 높이는 것이다. 하지만, 고농도의 나노유체는 응집 및 침전되기 때문에 보통 낮은 분산안정성을 갖는다. 분산안정성이 확보되지 않으면 같은 농도임에도 불구하고 열전도도 값이 낮게 측정될 수 있고, 침전된 나노입자들이 유체의 흐름을 방해하여 열 시스템의 열전달 성능을 감소시키기도 한다 [9-10].

또한, 고농도에서 나노유체의 분산안정성을 높이기 위해 다양한 물리적, 화학적 방법들이 시도되고 있다. 하지만 지금까지 작동유체의 열전달 성능이 유의미하게 향상될 정도로 고농도에서 분산안정성을 확보할 수 있는 기술은 개발되지 않고 있다. 이런 기술이 개발되더라도, 고농도에 나노유체의 분산안정성을 정량적으로 평가하는 방법은 제한적이다. 이처럼 기존 분산안정성을 평가하는 방법에는 여러 가지 한계가 존재하기 때문에 높은 농도, 광학적 특성과 상관없이 분산안정성을 측정할 수 있는 새로운 분석 이론이 필요하다.

제 2 절 기존 연구

양방향 열전달 3ω 방법을 이용하여 신체조직과 같은 복잡한 형상의 시편들, 나노유체와 같은 복잡한 혼합물 시편들의 정확한 열물성 측정 및 열분석 사례들이 보고된 바 있다 [3,4]. 이렇게 측정하기 어려운 시편들의 경우에는 일반적으로 1 W/mK 보다 낮은 열전도도를 가지고 있다. 열전도도가 낮은 시편을 3ω 방법을 이용하여 정확한 열전도도 측정하기 위해서는 낮은 열전도도를 갖는 기판 위에서 측정하는 것이 유리하다 [5]. 이 때문에 최근 발표된 양방향 열전달 3ω 방법의 경우, 대부분 glass 기판 위에 증착된 금속히터가 3ω 센서로 사용되고 있다 [3].

또한, 일부 사례에서는 polyimide 등의 폴리머 기판도 사용된 바 있다 [6]. 하지만 기판이 낮은 열전도도를 가질 경우, 기존 Cahill 식에서 무시되어온 요소인 미소히터의 두께 및 열용량과 미소히터와 기판 사이의 접촉열저항 등을 실험결과 및 해석에 고려해야 할 수 있다. 이와 관련해서 Wang et al. [11]에서는 미소히터의 열용량과 두께를 감안한 2차원 전도열전달의 해석해를 도출하여, 낮거나 높은 thermal penetration depth 영역에서 기존 Cahill 식의 결과가 실제값과 차이가 날 수 있음을 발표한 바 있다. 반면 미소히터와 기판 사이의 접촉열저항의 경우에는 그 크기가 열전도도 측정에 영향을 미칠 정도로 크지 않다고만 알려져 있다 [12].

그리고 Oh et al. [4]에서는 3ω 방법을 이용하여 나노입자의 침전물에 의한 온도진폭을 측정하여 침전 여부를 확인하려는 시도가 있었다. 여기서 사용된 3ω 방법은 시편의 가장 밑바닥에서 열전도도를 측정하기 때문에 나노유체의 응집 및 침전 특성을 파악하는 데 장점이 있다. 그리고 3ω 방법은 높은 공간 해상도를 가지고 있어 나노유체 한 방울만 가지고도 온도진폭을 정량적으로 측정할 수 있다. 특히, 기존 방법들과 다르게 광학적인 특성을 이용한 방법이 아닌 전도열전달을 이용한 방법이므로 고농도, 흡광 물질, 투명한 시료에 대해 측정이 가능하다. 하지만 아직은 어떠한 방법으로 3ω 신호를 분석하여 입자의 크기, 분포도, 농도에 관한 정보를 유추할 수 있는지 대해서는 보고된 바 없다.

현재 나노유체의 분산안정성을 평가하는 방법으로는 UV-Vis spectrophotometer, Zeta potential, sediment photograph capturing, electron microscopy (TEM, SEM), light scattering method, sedimentation balance method 등이 있다 [13-18]. 이러한 측정 방법들은 입자 산란의 세기, 전기영동의 속도, 중력에 의한 침전과 같은 입자의 고유한 성질에 따라 분석원리가 개발되었다.

하지만 이러한 방법들은 나노입자, 바탕유체의 종류, 농도 범위 등에 따라 분산 안정성 측정이 어려울 수 있다. UV-Vis spectrophotometer, light scattering method 경우에는 나노유체에 레이저를 투과하여 입자 산란의 세기를 통해 분산안정성을 평가한다. 이 방법들은 나노입자의 굴절률, 입자크기와 산란 특성 사이의 관계를 미리 알고 있어야 하며, 고농도이거나 입자가 CNT와 같이 검거나 유리와 같이 투명한 물질이면 측정에 어려움이 있다 [19]. 그리고 가장 일반적인 방법인 zeta potential의 경우에는 바탕유체의 점도에 제한이 있고, 입자 표면의 전기적 특성을 측정하기 때문에 입자의 크기나 침전을 직접적으로 측정할 수 없다. Sediment photograph capturing, sedimentation balance method 경우에는 많은 양의 시료와 긴 측정시간이 필요하다. 또한, TEM, SEM 경우에는 현미경으로 시료를 직접 관찰하여 분산안정성을 평가한다. 이 방법은 시료의 상태에 따라 희석, 증착, 건조하는 전처리 과정이 필요하다 [20]. 이 모든 과정은 복잡하고 시간과 비용도 많이 들며 측정하고자 하는 본래 시료의 모습을 잃어버리기도 한다.

제 3 절 연구 목표

나노유체의 분산안정성을 평가하는 방법에는 다양한 방법들이 있다. 하지만 고농도, 흡광 물질, 투명한 물질과 같은 시료도 측정할 수 있는 만능의 방법은 아직 개발되지 않고 있다. 본 논문에서는 기존 방법과 다르게 3ω 방법으로 나노유체의 밑바닥 부분의 열전도도 변화를 측정하여 나노유체의 분산안정성을 평가하는 방법을 제안한다. 이 논문은 다음과 같이 구성되어 있다.

2 장에서는 3ω 방법의 간단한 소개와 단방향 열전달 및 접촉열저항, 양방향 열전달 3ω 식을 유도한다. 그리고 나노유체 내의 나노입자가 침전되는 구조를 열전달 모델링 하였다. 유도방법은 general Feldman transfer matrix method을 사용하였다. 유도된 식을 이용하여 농도와 입자크기에 따라서 온도진폭 변화를 비교하였다.

3 장에서는 나노유체의 열전도도를 측정하기 위한 3ω 센서 제작 방법과 나노유체의 제조과정 그리고 실험방법에 관하여 설명한다. 3ω 센서의 기판은 EXG glass 와 polyimide film으로 제작하였고, 히터의 폭과 두께는 AFM으로 측정하였다. 나노유체는 분산 방법, 농도, 분산 시간을 다르게 하여 총 30개의 나노유체를 제조하였다.

4 장에서는 단방향 열전달과 양방향 열전달 3ω 방법을 이용하여 기판 (EXG glass, polyimide), 액체 (DI-water, ethylene glycol)의 열전도도를 측정한다. 그리고 양방향 열전달 3ω 방법에서 열전도도가 낮은 시료의 열전도도를 측정하기 위하여 3ω 센서에 대한 열분석을 하였다. 이를 위하여 실험적으로 측정된 온도진폭 및 위상지연 값을 Cahill 식, 히터의 열용량 및 두께를 고려한 식 및 2차원 수치해석을 통하여 구한 값들과 비교하였다.

5 장에서는 Al_2O_3 나노입자와 DI-water를 혼합한 나노유체의 열전도도를 측정하여 분산안정성을 평가하는 방법을 제안한다. 나노유체를 교반기, 교반기와 초음파 분산기를 동시에 이용하는 두 가지 방법으로 제조하여 시간에 따른 온도진폭을 비교하였다. 교반기만 이용하여 분산한 방법보다 교반기와 초음파 분산기를 동시에 이용한 방법에서 분산안정성이 더 높은 것을 확인하였다. 또한, 농도에 따라서 실험값을 비교하였는데, 농도가 높아질수록 분산안정성이 낮아진 것을 확인하였다. 그리고 분산 시간을 5 ~ 120 min로 나누어 제조하여 온도진폭을 비교하였다. 분산 시간이 길수록 분산안정성은 좋아지는 것으로 확인되었다. 그러나 온도진폭을 비교하는 방법으로는 정량적인 분산안정성을 측정할 수 없었다. 그래서 온도진폭과 시

간을 무차원화 하였다. 그리고 유리함수 형태로 curve fitting하여 분산안정성에 대한 무차원 매개변수 Stability constant (S)값을 구하였다. 이를 통해 매개변수 S값 하나만을 가지고 분산 방법, 농도, 분산 시간에 따른 분산안정성을 정량적으로 비교하였다. 또한, 검증을 위해서 굉장히 균일한 입자크기를 가지며, 완벽에 가까운 구형의 입자인 표준물질로 실험하였다. Silica bead 1000 nm 경우에는 실험값과 이론값이 비슷한 경향으로 확인되었지만, silica bead 500 nm와 polystyrene bead의 경우에는 침전속도가 논문에서 가정한 스톡스 법칙보다 느려지는 것으로 확인되었다. 이는 표준입자에 분산안정성 증가를 위한 계면활성제 등의 첨가제 때문이거나, 입자크기가 작아 브라운 운동 때문일 것으로 사료된다.

제 2 장 3ω 방법의 소개 및 이론

제 1 절 3ω 방법의 소개

나노유체는 DI-water, ethylene glycol, oil과 같은 작동유체에 금속 나노입자를 균질하게 분산한 현탁액이다. 나노유체 내부의 나노입자들은 시간이 지나면서 밀도차와 중력에 의해 바닥으로 침전하게 된다. 이때, 나노유체 바닥 면의 열전도도는 시간에 따라 증가하게 되며, 3ω 방법 신호인 온도진폭은 감소하게 된다.

3ω 방법은 기판에 증착된 미소히터의 온도진폭을 측정하여 기판의 열전도도를 구하는 방법으로 Cahill에 의해 1990년 처음 제안되었다 [2]. 3ω 방법은 미소히터를 히터이자 온도센서로 사용하여 증착된 기판 혹은 박막의 열전도도를 측정한다. 미소히터에 ω 각속도로 교류전류를 인가하면 Joule heating 공식에 의하여 2ω 각속도로 진동하는 열이 발생한다. AC로 가열된 미소히터에서 발생한 열은 미소히터가 놓인 기판 혹은 박막으로 전도열전달 된다. 이와 같은 전도열전달에 따라 미소히터의 온도도 2ω 각속도로 진동하게 된다. 미소히터의 온도진폭은 주변의 열물성에 따라 결정되며, 미소히터에서 발생하는 3ω 각속도의 전압차를 측정함으로써 확인할 수 있다. 미소히터 온도진동은 진동의 크기를 나타내는 온도진폭과 인가 전류 신호에 대비하여 위상지연 값으로 나타낼 수 있다. 온도진폭 값을 Cahill이 제안한 식에 대입하면 물질의 열전도도를 구할 수 있다.

이번 장에서는 기판의 열전도도를 측정하기 위한 3ω 방법의 기본개념과 단방향 전도열전달의 유도과정에 관한 설명을 하고자 한다. 그 후에는 미리 제작된 3ω 센서 위에 시료를 측정하기 위한 양방향 전도열전달, 복잡한 다층 구조의 시료의 열전도도를 측정하는 방법에 관한 설명을 하고자 한다.

제 2 절 단방향 열전달 및 접촉열저항

1. 단방향 열전달

Fig. 2-1은 3ω 센서의 단면과 전체적인 개략도를 도식화하였다. [21] 미소히터의 길이 l 이 미소히터의 폭의 절반인 b 보다 충분히 긴 경우, 그림과 같은 2차원 모델링이 가능하다. 먼저 미소히터와 기판의 전도열전달에 의한 온도진폭 이론식을 구하기 위하여 원기둥 형태의 미소히터를 먼저 고려한다. 정지된 유체 안에 있는 원기둥 히터를 고려해 보자. 원기둥 좌표에서의 반경 방향의 1차원 전도열전달은 식 (2.1)으로 표현할 수 있다.

$$\frac{\partial T(r,t)}{\partial t} = \alpha_f \left[\frac{\partial^2 T(r,t)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial T(r,t)}{\partial r} \right] \quad (2.1)$$

여기서 r, t 는 각각 반경 방향의 거리와 시간이며, $T(r,t)$ 은 유체의 위치와 시간에 따른 온도를 나타낸다. α_f 는 유체의 열확산율이다. 만약 온도가 각속도 2ω 인 sine 함수이면, 유체의 온도는 식 (2.2)와 같이 복소수의 형태로 표현할 수 있다.

$$T(r,t) = T_r e^{i2\omega t} \quad (2.2)$$

여기서 $T_r = T(r)$ 이며, $\omega = 2\pi f$ 이고는 f 주파수이다. 히터의 직경이 매우 작을 경우, 히터 내부의 온도변화는 무시할 수 있다. 이때, 히터 표면에서의 경계 조건은 식 (2.3)과 같이 나타낼 수 있다.

$$\rho_h C_{p,h} \pi r_0^2 \cdot i2\omega T_{r_0} = \frac{\dot{Q}}{l} + 2\pi r_0 k_f \frac{\partial T_r}{\partial r} \Big|_{r=r_0} \quad (2.3)$$

여기서 $\rho_h, C_{p,h}$ 는 각각 히터의 밀도와 비열이다. r_0 는 히터의 반경이며 T_{r_0} 는 히터 표면에서의 온도를 나타낸다. \dot{Q} 는 히터의 발열량, k_f 는 유체의 열전도도이다. 식 (2.3)은 히터 표면에서의 에너지 보존법칙을 식으로 표시하였다. 좌변은 발열에 의

한 히터의 온도 증가를 나타내며, 우변은 히터의 발열량과 유체로의 전도열전달을 나타낸다. 식 (2.2)와 (2.3)을 적용하여 식 (2.1)을 풀이하면, 다음과 같은 식 (2.4)을 구할 수 있다.

$$T_{r_0} = \frac{\dot{Q}}{\pi l} \frac{K_0(q_f r_0)}{k_h q_h^2 r_0^2 K_0(q_f r_0) + 2k_f q_f r_0 K_1(q_f r_0)} \quad (2.4)$$

여기서 $q_f = \sqrt{\frac{i2\omega}{\alpha_f}}$, $q_h = \sqrt{\frac{i2\omega}{\alpha_h}}$ 이며 각각 유체와 히터의 complex thermal wave number를 나타낸다. α_h 는 히터의 열확산율이다. K_0 , K_1 는 0th, 1st order의 modified Bessel 함수이다. k_f , k_h 는 각각 유체와 히터의 열전도도이다.

식 (2.4)을 통하여 도출된 온도는 원기둥 히터에 관한 식으로, 3ω 방법에서 일반적으로 사용되는 박막 히터에 적용하기 위하여 추가적인 작업이 필요하다. 얇은 박막 형태에서의 온도진폭을 나타내기 위하여 식 (2.4)을 적분 형태로 변환하면 식 (2.5)을 얻을 수 있다 [22].

$$\Delta T = \frac{\dot{Q}}{\pi l} \frac{1}{k_h q_h^2 (h/2)^2 K_0(q_s h/2)/k_s + 2q_s h K_1(q_s h/2)} \int_0^\infty \frac{1}{\gamma_s} \times \frac{\sin^2(xb)}{(xb)^2} dx \quad (2.5)$$

여기서 ΔT 는 얇은 박막 형태에서의 온도진폭을 나타내며, h 는 히터의 두께 q_s , k_s 는 각각 기판의 complex thermal wave number와 열전도도이다. $\gamma_s = k_s \sqrt{x^2 + i \frac{2\omega}{\alpha_s}}$ 이며 x 는 적분상수이다. 식 (2.5)은 기판 위의 유한한 히터의 온도진폭을 나타내며, 히터의 열용량과 두께를 고려한 식이다.

Cahill은 미소히터의 두께가, 기판의 두께와 열파형이 기판 깊이 방향으로 영향을 미치는 열침투깊이 대비 매우 얇기 때문에 이를 무시할 수 있다고 가정하였다. 그 결과로 미소히터의 두께에 의한 영향을 무시하면 아래와 같은 간단한 식으로 온도진폭을 표현할 수 있다 [2].

$$\Delta T = \frac{\dot{Q}}{\pi l} \int_0^\infty \frac{1}{\gamma_s} \times \frac{\sin^2(xb)}{(xb)^2} dx \quad (2.6)$$

일반적인 3ω 방법에서는 식 (2.6)으로 대부분 시편의 열전도도를 정확하게 측정할 수 있다.

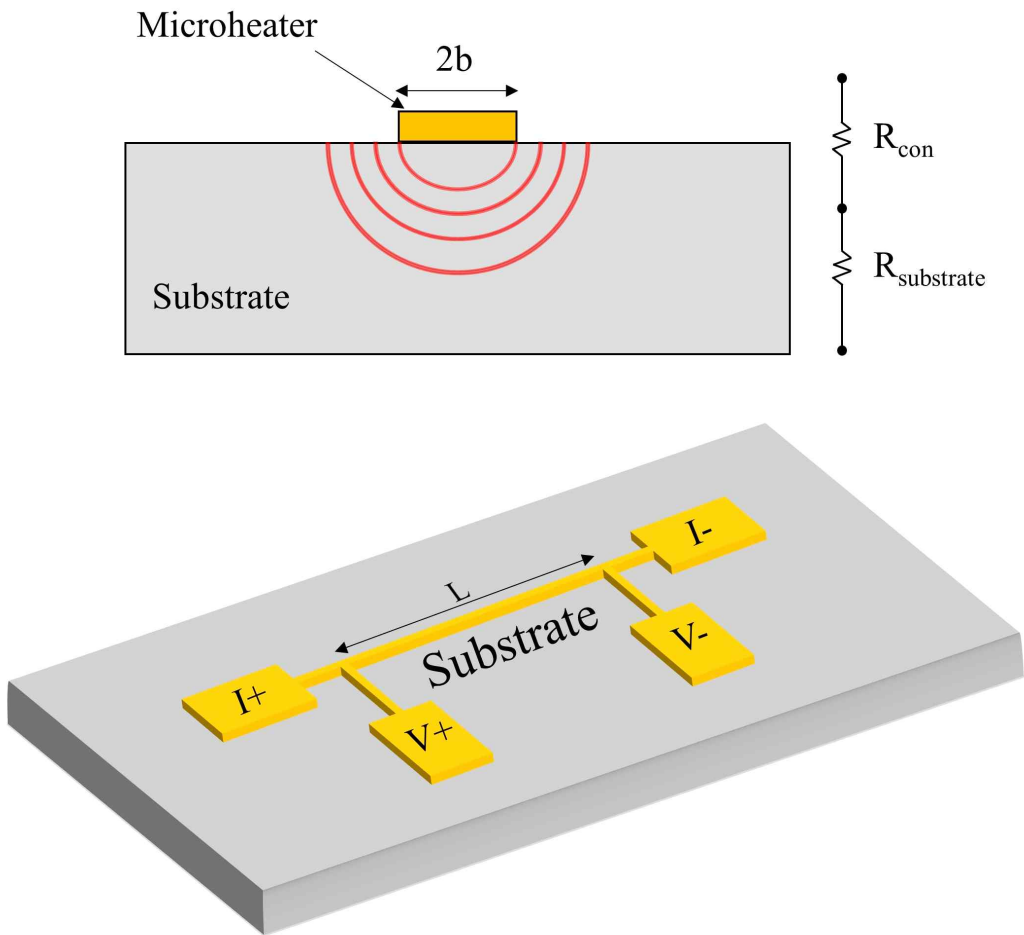
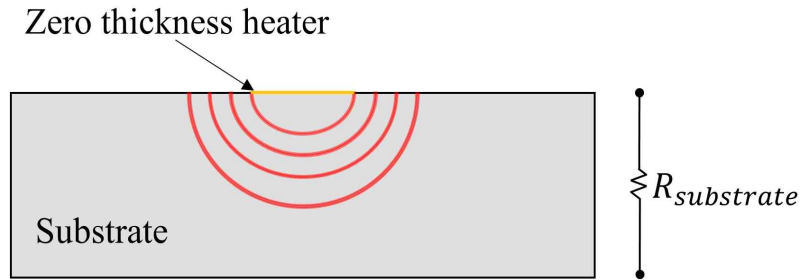
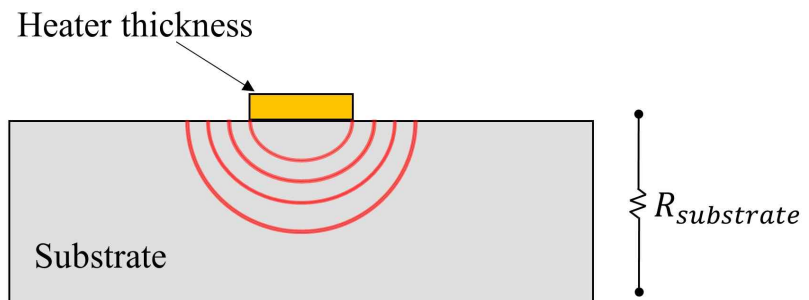


Figure 2-1 Schematic diagrams of microheater deposited on substrate and thermal resistances between interface and substrate



(a)



(b)

Figure 2-2 Cross-sectional schematic diagram of microheater and substrate (a) structure without considering microheater thickness and (b) structure considering microheater thickness

2. 접촉열저항

하지만, 앞서 언급한 바와 같이 특수한 시편의 열분석에는 미소히터의 두께, 열용량 및 미소히터와 기판 사이의 접촉열저항을 무시하는 경우 오차가 발생할 수 있다. 기판과 히터 사이의 접촉 저항을 설명하기 위해, Feldman 재귀 행렬 방법을 사용했다 [12,13]. Fig. 2-3와 같은 3ω 센서를 기판상의 히터 및 히터와 기판 사이의 인터페이스로 가정해보자 [21]. Bauer et al.가 표기한 시스템에 따라 2개의 층 ($j=1, 2$) 과 1개의 인터페이스 ($i=2$)으로 구성된다 [12].

$$\Delta T = \frac{\dot{Q}}{2\pi l} \int_0^\infty \frac{B^+ + B^-}{A^+ B^- - A^- B^+} \times \frac{\sin^2(xb)}{\gamma_2 (xb)^2} dx \quad (2.7)$$

여기서 A^+ , A^- 와 B^+ , B^- 는 Feldman 알고리즘과 벡터 \tilde{A} 와 \tilde{B} 의 구성 요소로부터 무차원화된 매개변수를 나타낸다. 히터의 위쪽은 단열로 가정할 수 있으므로, A^+ , A^- 는 1/2이다. 그리고 \tilde{B} 는 다음과 같다 [12].

$$\tilde{B} = \frac{1}{2\gamma_2} \begin{pmatrix} \gamma_2 + \gamma_1 - \gamma_2 \gamma_1 R_2 & \gamma_2 - \gamma_1 + \gamma_2 \gamma_1 R_2 \\ \gamma_2 - \gamma_1 - \gamma_2 \gamma_1 R_2 & \gamma_2 + \gamma_1 + \gamma_2 \gamma_1 R_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

여기서 R_2 는 히터와 기판 사이의 접촉열저항을 나타낸다. 식 (2.8)을 계산하고 그 결과를 식 (2.7)에 대입하면 접촉열저항이 포함된 히터의 온도진폭 식을 얻을 수 있다. 이러한 방법으로 식 (2.6)을 확장하여 미소히터와 기판 사이 접촉열저항을 고려한 식은 다음과 같다. Fig. 2-3에서 보이는 바와 같이 γ_1 은 기판이기 때문에 γ_s 로 바꿀 수 있고, R_2 는 접촉열저항인 R_{con} 으로 바꾸어 표기하였다 [21].

$$\Delta T = \frac{\dot{Q}}{\pi l} \int_0^\infty \frac{1 + \gamma_s R_{con}}{\gamma_s} \times \frac{\sin^2(xb)}{(xb)^2} dx \quad (2.9)$$

일반적으로, sputter 등의 반도체 공정을 통하여 증착된 금속과 매끈한 기판 사이의 접촉열저항은 $10^{-7} \text{ m}^2\text{K/W} \sim 10^{-8} \text{ m}^2\text{K/W}$ 사이에 존재한다고 알려져 있다.

식 (2.9)와 식 (2.5)을 조합하여 얇은 박막 형태를 가지는 미소히터의 두께와 기판 사이의 접촉열저항을 모두 고려한 식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\Delta T = \frac{\dot{Q}}{\pi l} \frac{1}{k_h q_h^2 (h/2)^2 K_0(q_f h/2)/k_f + 2q_f h K_1(q_f h/2)} \int_0^\infty \frac{1 + \gamma_s R_{con}}{\gamma_s} \times \frac{\sin^2(xb)}{(xb)^2} dx \quad (2.10)$$

식 (2.10)을 통하여 미소히터의 두께와 기판 사이의 접촉열저항이 고려된 온도진폭을 계산할 수 있다 [21].

이번 2절 단방향 열전달 및 접촉열저항 장에서는 Cahill이 제안한 3ω 방법에 기초가 되는 식 (2.6)을 유도해보았다. 유도과정은 원기둥 좌표에서의 반경 방향의 1차원 전도열전달 식부터 시작하여 일반적인 얇은 박막 형태에 적용을 위하여 적분 형태로 변환하였고 히터의 두께를 무시하여 Cahill이 제안한 식까지 연결된다. 하지만 본 논문에서는 양방향 열전달 3ω 방법 적용하여 나노유체의 열전도도를 측정하기 위해 Cahill 식에서 무시되었던 미소히터의 두께와 접촉열저항을 고려한 이론식들을 유도하였다. 이에 대한 분석은 4장 3절 히터의 두께와 접촉열저항 분석에서 조금 더 자세하게 설명하고자 한다.

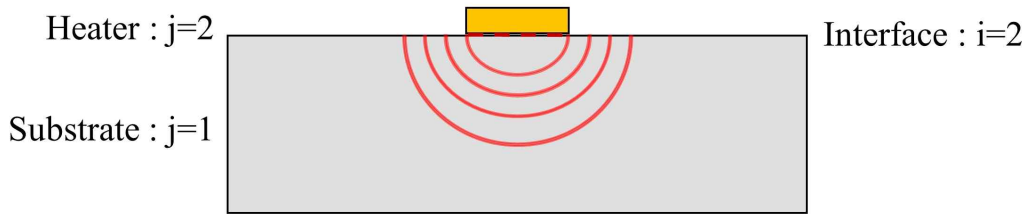


Figure 2-3 Schematic of microheater on substrate with an interface in between

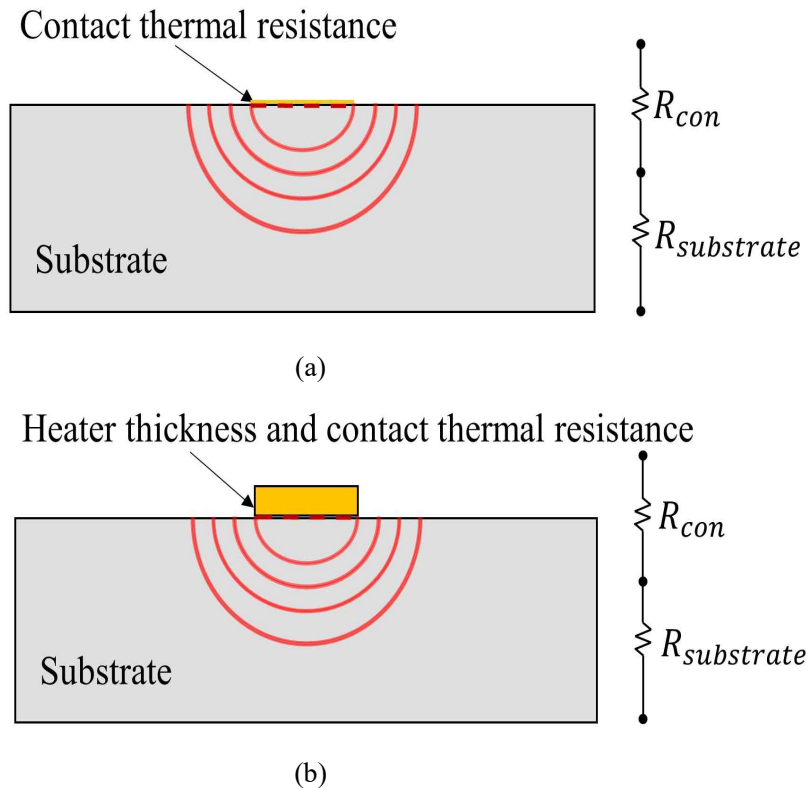


Figure 2-4 Cross-sectional schematic diagram of microheater and substrate (a) structure including interfacial thermal resistance between microheater and substrate, without considering microheater thickness and (b) structure including microheater thickness and interfacial thermal resistance

제 3 절 양방향 열전달

2절에서는 단방향 열전달 3ω 방법을 유도하였다. 그리고 이를 이용하면, 기판 혹은 박막 위에 미소히터를 증착하여 열전도도를 측정할 수 있다. 하지만 단방향 열전달 3ω 방법은 측정하고자 하는 물질에 직접 히터를 증착해야 하므로 공정상의 문제로 유체의 열전도도는 측정할 수 없다.

그래서 최근 연구에서는 이를 해결하기 위해서 미리 제작한 센서 위에 단순히 액체를 올려 측정하는 방식인 boundary mismatch (BMA), bi-directional 3ω method가 제안되었다 [3,23]. 최근 연구에서는 저주파 또는 고주파에서 BMA 방법을 사용하는 것이 오차가 있다고 보고 된 바 있다. 그래서 현재는 bi-directional method을 더 많이 사용한다 [24]. 그리고 general Feldman transfer matrix method을 이용하여 Fig. 2-6 와 같이 유체가 히터 위에 있어서 미소히터에서 발생한 열이 기판과 유체로 전도될 때의 미소히터의 온도진폭을 유도할 수 있다.

기판과 시료 사이에 히터의 온도진폭을 설명하기 위해, 앞서 사용했던 Feldman 재귀 행렬 방법을 사용했다 [19,20]. Fig. 2-7 와 같이 기판, 미소히터, 시료가 있다고 가정해보자. Bauer et al.가 표기한 시스템에 따라 3개의 층 ($j = 1, 2, 3$)으로 구성된다 [12]. 이때, 기판과 히터 사이의 접촉열저항, 시료와 히터 사이의 접촉열저항은 없다고 가정하였다. 식 (2.7)을 사용하지만 측정하고자 하는 형태에 따라 벡터 \tilde{A} 와 \tilde{B} 구성 요소가 다르다. Bauer et al.가 표기한 시스템에 따라 \tilde{A} 와 \tilde{B} 는 다음과 같다.

$$\tilde{A} = \frac{1}{2\gamma_2} \begin{pmatrix} \gamma_2 + \gamma_3 & \gamma_2 - \gamma_3 \\ \gamma_2 - \gamma_3 & \gamma_2 + \gamma_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

$$\tilde{B} = \frac{1}{2\gamma_2} \begin{pmatrix} \gamma_2 + \gamma_1 & \gamma_2 - \gamma_1 \\ \gamma_2 - \gamma_1 & \gamma_2 + \gamma_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

이를 계산하여 정리하면, 다음과 같다.

$$\tilde{A} = \frac{1}{2\gamma_2} \begin{pmatrix} \gamma_2 + \gamma_3 \\ \gamma_2 - \gamma_3 \end{pmatrix}, \quad \tilde{B} = \frac{1}{2\gamma_2} \begin{pmatrix} \gamma_2 - \gamma_1 \\ \gamma_2 + \gamma_1 \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

$\tilde{A} = \begin{pmatrix} A^+ \\ A^- \end{pmatrix}, \tilde{B} = \begin{pmatrix} B^+ \\ B^- \end{pmatrix}$ 이기 때문에 이를 식 (2.7) 에 대입하면 다음과 같은 식을 얻을 수 있다.

$$\Delta T = \frac{\dot{Q}}{\pi l} \int_0^\infty \frac{1}{\gamma_1 + \gamma_3} \times \frac{\sin^2(xb)}{(xb)^2} dx \quad (2.14)$$

Fig. 2-7에서 보이는 바와 같이 γ_1 은 기판 γ_3 은 시편이기 때문에 γ_1 는 γ_s , γ_3 는 γ_f 로 바꿀 수 있다. 식 (2.14)을 통하여 3ω 센서 위에 시편이 올려져 있을 때 온도진폭을 계산할 수 있다. 이를 통해 기판의 열전도도를 알고 있다면, 시편의 열전도도를 측정할 수 있다 [25,26].

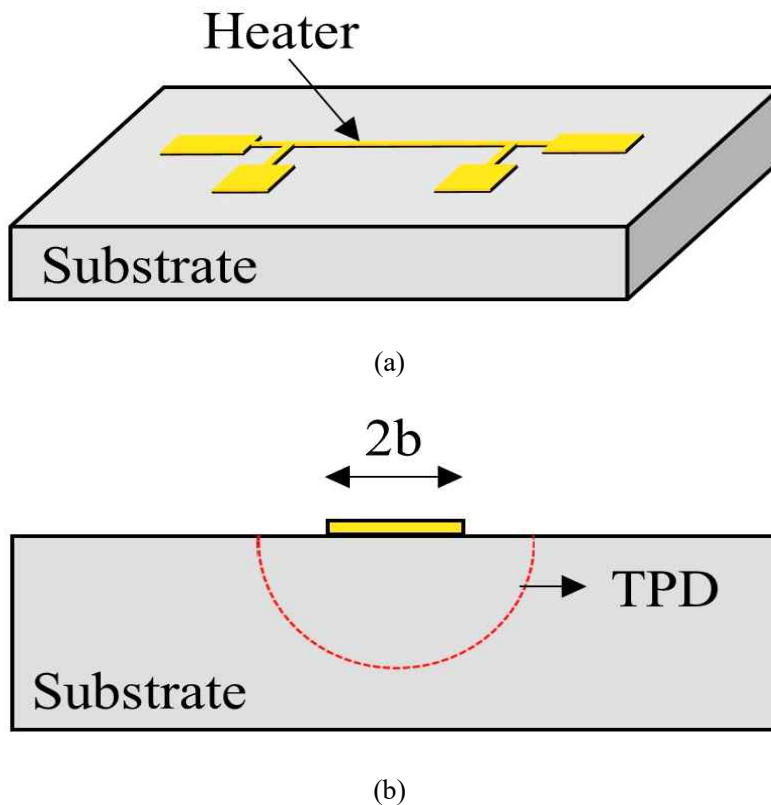
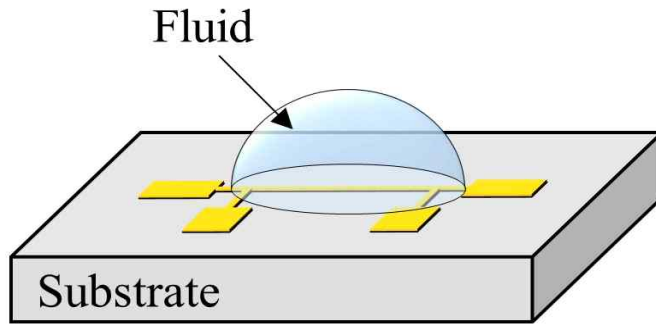
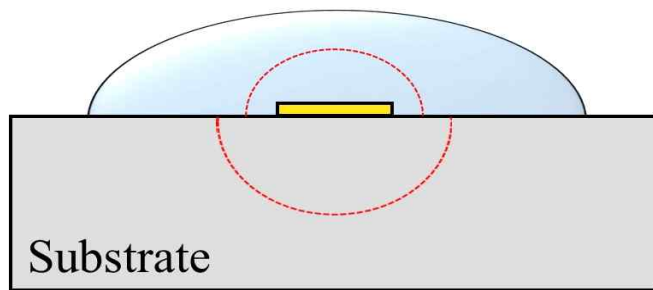


Figure 2-5 (a) Schematic of a typical 3ω sensor, to measure the thermal conductivity of the substrate. (b) side view of 3ω sensor comprises a microheater line with dimensions of $b = 5 \mu\text{m}$ width $l = 1450 \mu\text{m}$ length, 2000 \AA thickness



(a)



(b)

Figure 2-6 (a) Fluid is placed on top of the 3ω sensor to measure the thermal conductivity of the fluid (b) side view showing the bidirectional heat transfer from the microheater to the fluid and substrate

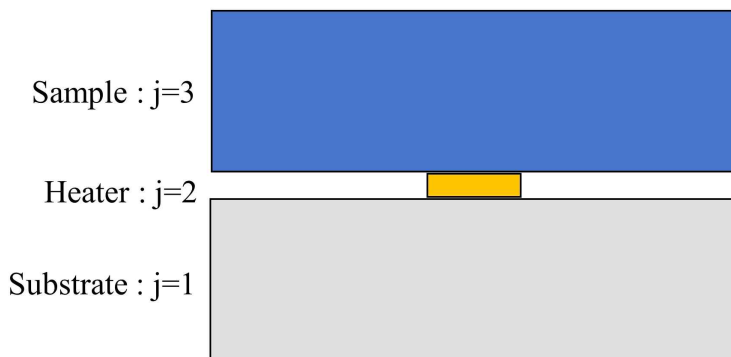


Figure 2-7 Schematic of sample on the substrate with a microheater in between

제 4 절 열전달 모델링

식 (2.14)을 이용하여 DI-water와 같이 순수한 액체의 경우에는 온도진폭을 측정할 수 있지만, 나노유체와 같이 바탕유체에 나노입자가 포함되어있는 혼합물에 경우에는 몇 가지 고려해야 할 사항이 있다. 실제 나노유체 내의 나노입자들은 중력, 브라운 운동, 반 데르 발스 힘으로 움직인다. 먼저 중력부터 살펴보면, 유체가 정지 상태일 때, 시간이 지남에 따라 유체와 입자 사이의 밀도 차에 의해 입자는 중력에 의해 가속화되다가 항력이 커지기 때문에 입자는 일정한 속도로 침전한다. 이때, 침전속도는 스톡스 법칙으로, 침전속도 v 는 식 (2.15) 표현할 수 있다 [27].

$$v = \frac{g(\rho_p - \rho_f)d^2}{18\mu} \quad (2.15)$$

여기서, 유체와 입자 사이의 밀도 차는 $(\rho_p - \rho_f)$, 유체의 점도는 μ , 입자의 크기는 d , g 는 중력 가속도이다. 나노입자가 완벽한 구면일 경우 입자크기에 따라 침전속도가 결정되기 때문에 침전속도를 측정하면 입자크기를 추정할 수 있다 [27]. 이외에도 단일입자의 경우에는 액체 속에서 나노입자들이 불규칙하게 브라운 운동하는 현상도 있으며, 나노유체처럼 여러 입자가 같이 있는 경우에는 입자와 입자 사이의 거리에 따라 인력 또는 척력이 작용하는 반 데르 발스 힘이 있다 [29]. 다양한 힘들이 상호작용하면서 입자들이 매우 복잡하게 움직이는 탓에 입자 간의 확산, 응집, 침전을 예측하기 어렵다.

이론적으로 침전을 flocculated sedimentation, dispersed sedimentation, mixed sedimentation이 세 가지 유형으로 분류한 사례가 있다 [30,31]. flocculated sedimentation는 입자들이 응집되어 어느 일정 수준 이상으로 뭉치면 침전하는 유형이고, dispersed sedimentation는 입자들이 응집되지 않고 개별 입자가 침전하는 유형이다. 그리고 두 유형이 동시에 일어나는 mixed sedimentation가 있다. 본 논문에서 제조할 나노유체가 어떤 유형인지는 자세하게 모르겠으나, 바닥 면에서 측정하기 때문에 침전 중 응집되는 입자와 원래 큰 입자와 구별할 수 없기 때문에 dispersed sedimentation 유형으로 가정하였다. 그리고 오직 중력에 의해서만 바닥 면으로 이동하며 입자들이 일정한 공극률을 갖는 층을 형성하기 때문에 나노유체, 침전된 나노

입자 층, 기판으로 형성되는 3층 구조를 가지도록 모델링 하였다 [3]. 앞서 설명한 것처럼 3층 구조 또한 **general Feldman transfer matrix method**를 이용하여 구할 수 있다. Bauer et al.가 표기한 시스템에 따라 4개의 층 ($j = 1, 2, 3, 4$)로 구성된다 [12]. 이때, 기판과 히터 사이의 접촉열저항, 시료와 히터 사이의 접촉열저항은 없다고 가정하였다. 유도된 식은 다음과 같다.

$$\Delta T = \frac{\dot{Q}}{\pi l} \int_0^\infty \frac{\gamma_4 \sinh(\gamma_3 R_3) + \gamma_3 \sinh(\gamma_3 R_3)}{(\gamma_1 + \gamma_4 + \gamma_3^2) \sinh(\gamma_3 R_3) + (\gamma_3 \gamma_1 + \gamma_4) \cosh(\gamma_3 R_3)} \times \frac{\sin^2(xb)}{(xb)^2} dx \quad (2.16)$$

여기서 γ_1 는 γ_s 로, γ_3 는 γ_{pl} 로, γ_4 는 $\gamma_{nanofluid}$ 로 바꿀 수 있다.

$$\Delta T = \frac{\dot{Q}}{\pi l} \int_0^\infty \frac{\gamma_{fluid} \sinh(\gamma_{pl} R_{pl}) + \gamma_{pl} \sinh(\gamma_{pl} R_{pl})}{(\gamma_s + \gamma_{fluid} + \gamma_{pl}^2) \sinh(\gamma_{pl} R_{pl}) + (\gamma_{pl} \gamma_s + \gamma_{fluid}) \cosh(\gamma_{pl} R_{pl})} \times \frac{\sin^2(xb)}{(xb)^2} dx \quad (2.17)$$

여기서 $R_{pl} = t_{pl}/k_{pl}$ 이며, $t_{pl} = 1.477 V \psi_0$ 이다. V 는 나노유체의 부피이다. t_{pl} 는 침전된 나노입자 층의 두께이며 k_{pl} 는 침전된 나노입자 층의 열전도도 값이다. 모든 입자의 크기가 같다고 가정하면 공극률 또한 47.7%로 일정하다. 완벽히 분산된 나노유체와 일정한 공극률을 가지고 쌓인 나노입자 층은 열전도도, 밀도, 비열을 식 (2.18), (2.19), (2.20)을 이용하여 구할 수 있다 [32].

$$k_{nano} = \left[\frac{k_p + 2k_{bf} + 2\psi(k_p - k_{bf})}{k_p + 2k_{bf} - \psi(k_p - k_{bf})} \right] \cdot k_{bf} \quad (2.18)$$

$$\rho_{nano} = \frac{[\rho_{bf} V(1 - \psi) + \rho_p V\psi]}{V} \quad (2.19)$$

$$c_{p,nano} = \frac{[\rho_{bf} V(1 - \psi)c_{p,bf} + \rho_p V\psi c_{p,p}]}{(\rho_s V)} \quad (2.20)$$

식 (2.17)을 이용하여 Al_2O_3 200 nm를 DI-water에 0.1, 0.2, 0.3 vol. %로 분산한 나노유체의 온도진폭을 시간에 따라 Fig. 2-8에 나타내었다.

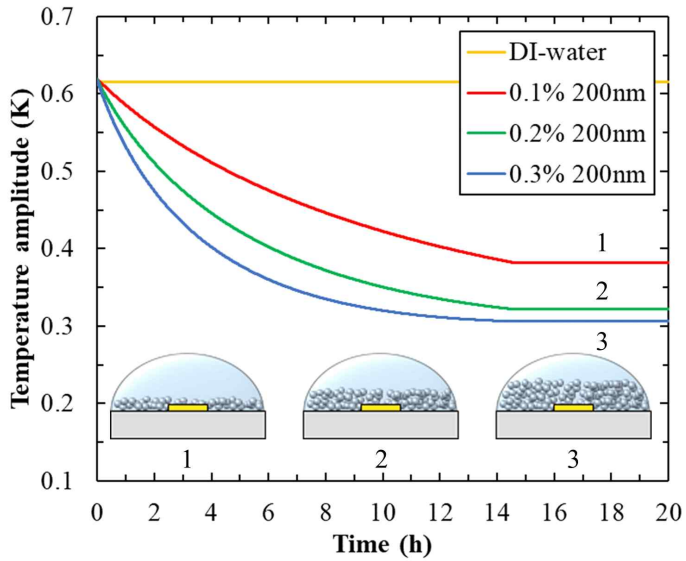
Fig. 2-8은 DI-water와 Al_2O_3 200 nm를 DI-water에 0.1, 0.2, 0.3 vol. %로 분산한 나노유체의 온도진폭을 식 (2.17) 로 계산한 그래프이다. 이때, 나노유체의 높이는 3.8 mm로 계산하였다. DI-water와 나노유체를 비교해 보면, DI-water는 온도진폭이 시간에 따라서 일정하지만, 나노유체는 시간에 따라서 온도진폭이 감소하는 것을 보인다. 이는 시간이 지남에 따라 나노입자가 침전하여 TPD 내의 농도를 높여 열전도도를 높이기 때문이다. 이를 이용하면 나노유체의 침전 여부를 빠르게 확인할 수 있다.

나노유체의 농도에 따른 온도진폭을 비교해 보자. Fig. 2-8 (a)는 0.1, 0.2, 0.3 vol. %로 분산한 나노유체와 침전 후 15 hr이 지났을 때 침전이 완료된 나노유체 내의 모습이다. Fig. 2-8 (a)을 보면, 같은 입자크기임에도 불구하고 농도 차이 때문에 온도진폭 기울기가 달라진다. 또한, 끝점의 온도진폭은 농도가 높을수록 낮다. 이는 높은 농도의 나노유체는 초당 쌓이는 입자의 수도 많아 온도진폭이 많이 감소하며 끝점에서 농도가 높을수록 낮은 온도진폭을 가지기 때문이다. 여기서 알게 된 사실은 나노유체의 농도는 끝점의 온도진폭 값과 온도진폭의 기울기에 영향을 미친다는 것이다. Fig. 2-8 (a) 아래 개략도는 15 hr 이후 모든 나노입자가 침전되어 바닥 면에 층을 이루는 모습이다. 농도가 높을수록 침전된 나노입자 입자층의 두께가 높아지는 것을 알 수 있다. 침전된 층이 완전히 촘촘하게 쌓여 있다고 가정하여 공극률이 44.7%이고 Al_2O_3 나노입자의 열전도도가 30 W/mK 때 입자층의 열전도도는 2.35 W/mK이다 [33].

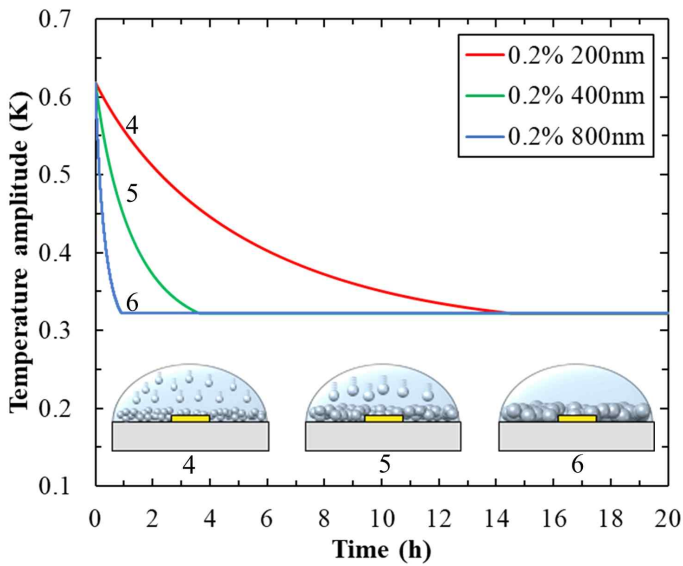
이제 같은 농도에서 나노입자들의 입자크기가 다를 경우의 온도진폭 값을 비교해보자. Fig. 2-8 (b)는 동일한 농도 0.2 vol. %에 입자크기가 각각 200, 400, 800 nm가 있다고 가정하여 계산한 결과이다. Fig. 2-8 (b)을 보면 200, 400, 800 nm 대략 15, 4, 1 hr 경과했을 때 침전이 끝난다. 앞서 설명한 스톡스 법칙처럼 입자크기가 클수록 침전속도가 빨라 끝점의 시간이 빨라지고 반대로 입자크기가 작을수록 침전속도가 느려 끝점의 시간이 느린 것으로 확인되었다. 여기서 알게 된 사실은 침전이 끝나는 시간은 농도와 상관없이 입자크기에 대한 정보를 가지고 있다는 것이다. 그리고 다시 Fig. 2-8 (a)을 보면 동일한 입자크기를 갖고 있으면 농도가 다르더라도 같은 시간에 침전이 끝나는 것으로 확인된다. Fig. 2-8 (b)의 아래 개략도는 침전시간 1 hr를 기준의 모습이다. 입자크기끼리 비교하면 입자크기 200 nm 나노유체는 침전 초반 모습이고, 입자크기 400 nm 나노유체는 같은 시간이지만 침전이 상당히 진행되고 있고, 입자크기 800 nm 나노유체는 이미 침전이 끝난 모습이다. 입

자크기의 차이 때문에 끝점의 시간은 다르지만, 농도는 동일하기 때문에 끝점의 온도진폭은 같다.

이러한 이론 결과들을 통해 우리는 침전이 끝나는 시간과 그때의 온도진폭 값은 입자의 크기, 농도, 분산안정성에 대한 정보를 가지고 있다는 것을 알게 되었다. 이를 통해 분산안정성을 측정할 수 있다. 이러한 가설을 증명하기 위해 5장에서 여러 가지 나노유체를 제작하여 실제 실험을 진행하였다.



(a)



(b)

Figure 2-8 (a) The temperature amplitude of the nanofluid obtained by dispersing DI-water and Al_2O_3 200 nm in 0.1, 0.2, 0.3 vol. % in DI-water, and the schematic diagram of the nanofluid, 13 hours after the experimental time (b) The average particle size of 200, 400, and 800 nm are 0.2 vol. % in DI-water, and the schematic diagram of the nanofluid after 1 hours of experimental time

제 3 장 센서 제작 및 실험방법

제 1 절 센서 제작

1. 센서 제작

3ω 센서는 반도체 공정을 통하여 제작되었다. 3ω 센서는 두 가지 종류의 기판을 이용하여 제작하였다. 제작 과정 순서는 Fig. 3-1과 같고, EXG glass와 polyimide 두 센서는 동일한 제작 과정으로 제작되었다. 두 종류는 EXG glass wafer와 polyimide film으로, 일반적으로 EXG glass는 1 W/mK 보다 큰 열전도도를 가지고 있고 polyimide film은 1 W/mK 보다 작은 열전도도를 가지고 있다. 낮은 열전도도 소재의 정확한 열전도도 측정을 위하여 낮은 열전도도를 가지는 기판 위에 증착된 미소히터를 사용하는 것이 유리하다.

기판의 두께는 각각 EXG glass는 0.7 mm이고, polyimide film은 0.073 mm이다. 기판들은 클리닝 과정을 거쳐, sputter를 이용하여 Ti/Au 250 nm가 증착되었다. Ti는 Au의 adhesion layer로 50 nm가 증착되었다. adhesion layer는 주로 기판과 증착 금속 사이의 접착력을 높이기 위해 사용된다. 금속 증착이 완료된 기판 위에 미소히터를 패터닝 하기 위한 포토공정이 수행되었다. 식각공정은 Ti/Au의 wet etching으로 이루어졌으며, 잔여 포토레지스트는 제거되었다. 다이싱 과정까지 완료된 3ω 센서의 사진을 Fig 3-2.에 표시하였다 [21]. Fig 3-2. (a)는 EXG glass 센서이며, Fig 3-2. (b)는 polyimide 센서의 사진이다.

이렇게 제작된 센서는 기판의 열전도도를 측정할 수 있다. 나노유체와 같은 액체를 측정하기 위해서는, 액체를 담을 용기가 필요하다. 액체를 담을 용기는 별도의 접착제가 필요 없는 PDMS로 제작하였다. 그리고 깨끗한 Si wafer에 Sylgard 184 PDMS와 경화제를 10:1로 섞어 부어준 뒤 핫 플레이트로 가열한 후 경화된 PDMS에 구멍을 뚫어 용기를 제작하였다. PDMS 구멍의 직경과 높이는 5 mm와 6 mm이다. Fig 3-3. (a)는 3ω 센서 위에 구멍이 뚫린 PDMS를 붙인 사진이다. Fig 3-3. (b)는 PDMS 내부에 나노유체가 채워진 모습이다. 액체 주입 후 증발을 막기 위해 커버 글라스를 올렸다.

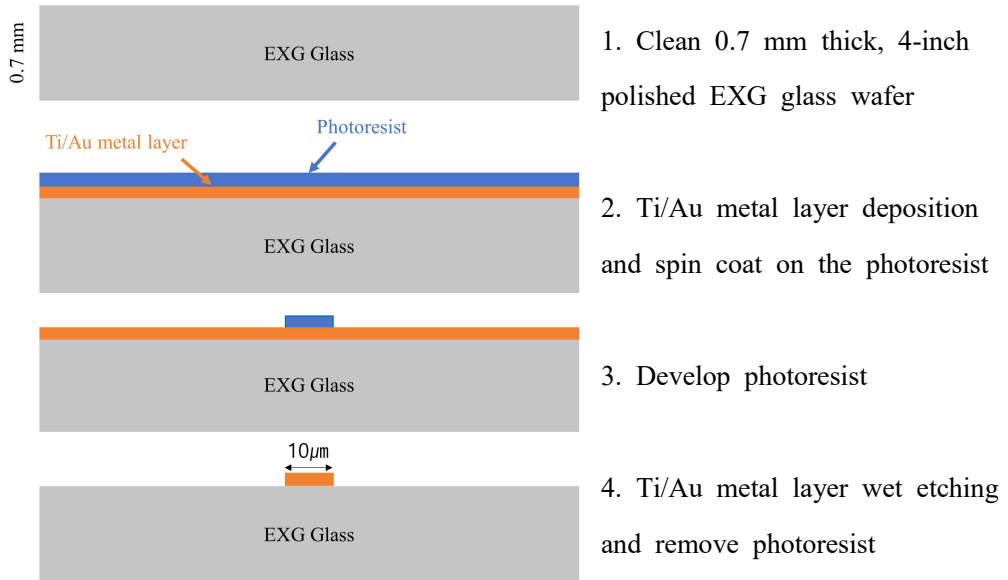
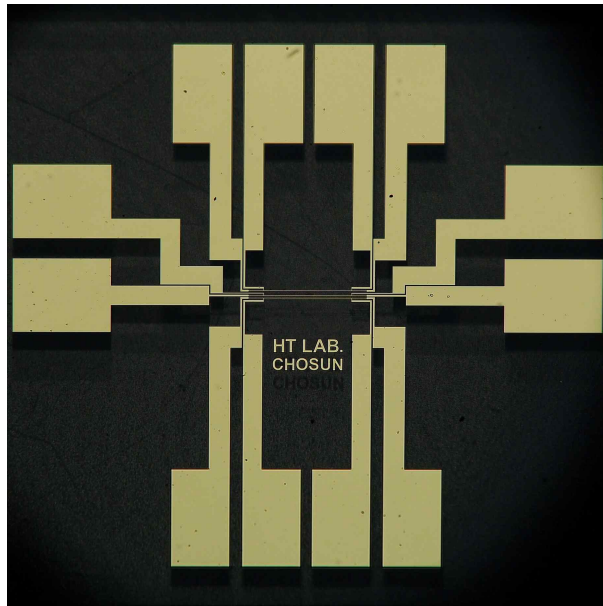
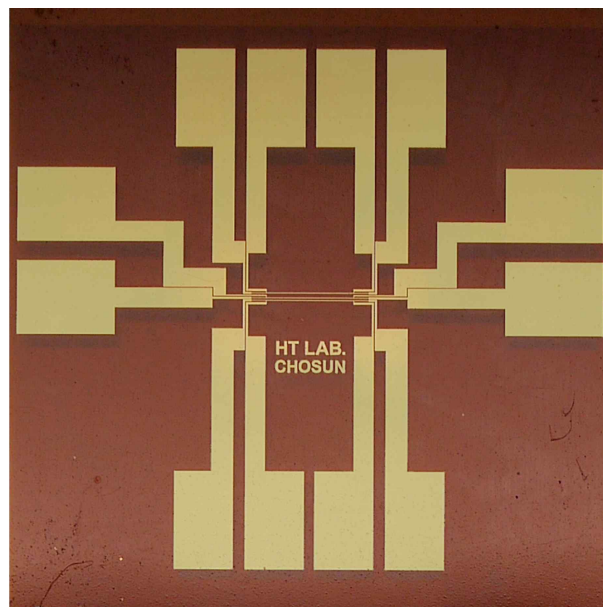


Figure 3-1 3ω sensor manufacturing process

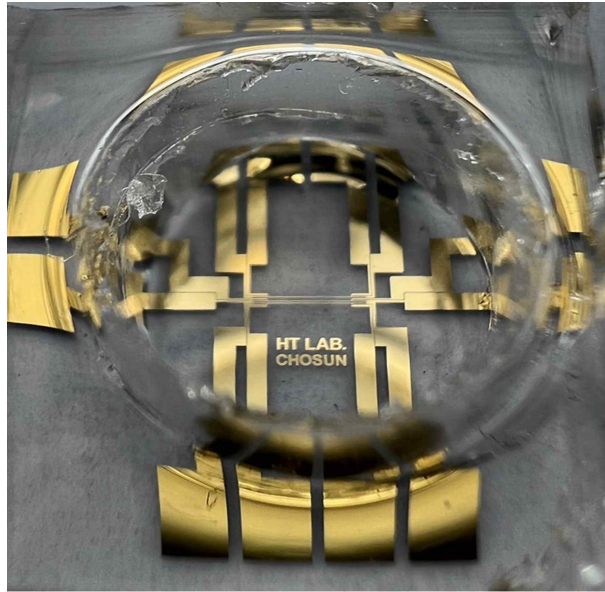


(a)

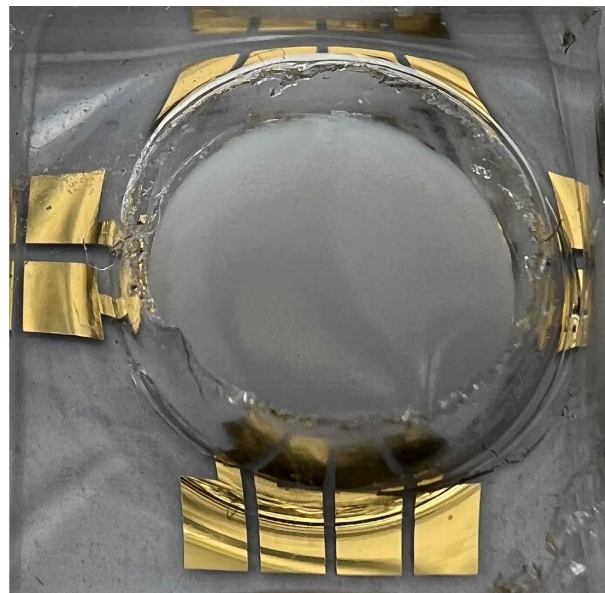


(b)

Figure 3-2 Microheater on (a) EXG glass and (b) polyimide film fabricated by semiconductor fabrication process



(a)



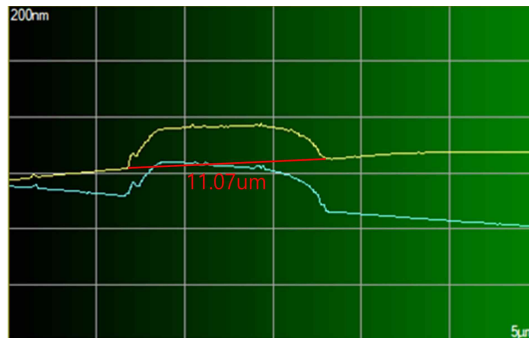
(b)

Figure 3-3 (a) Picture of PDMS package attached to 3ω sensor, (b) Picture of nanofluid injected inside the PDMS package

2. 히터의 폭과 두께 측정

3ω 방법에서 히터의 폭은 열전도도를 결정하는 매우 중요한 변수 중 하나이다. 센서의 제작할 때 폭은 10 μm 로 설계하였지만, 실제 공정에서는 온도, 압력, 챔버의 오염도, 금속의 성장 속도와 같은 여러 공정변수 때문에 차이가 있을 수 있다. 그래서 새로 제작한 센서는 열전도도 측정 실험을 하기 전에 히터의 폭을 측정해야 한다.

측정 장비로는 PSIA 사의 XE-1000 Atomic Force Microscopoe (AFM)을 사용하였고, NSC36C 켈틸레버 (0.95 N/m, 105 kHz)를 이용하여 0.1 Hz로 60 μm 스캔하였다. 측정 결과는 Fig 3-4에 나타내었다. 측정 결과 센서의 폭은 EXG glass 경우에는 11.07 μm , polyimide 경우에는 10.55 μm 으로 관측되었다.



(a)



(b)

Figure 3-4 AFM 2D image of (a) EXG glass 3ω sensor and (b) polyimide 3ω sensor

3. 온도에 따른 4 wire 저항 측정

3ω 방법에서 미소히터의 온도에 따른 저항 변화를 정확하게 측정하기 위해서, 별도의 실험을 진행하였다. 3ω 센서를 챔버에 위치시키고 챔버를 오븐에 넣었다. 오븐을 325 K까지 설정하고 가열하였고 챔버와 센서가 충분히 325 K까지 온도가 올라가도록 약 3 hr 동안 유지하였다. 그 이후에 가열을 멈추고 천천히 식히면서 측정하였다. 온도는 T 타입의 열전대 3개를 히터 주변에 부착하여 측정하였고 3개의 평균값을 계산하여 온도값으로 나타내었다. 측정은 DAQ를 이용하여 10 s에 한 번씩 측정하였고 측정된 결과값은 Fig. 3-5에 나타내었다.

측정된 온도에 따른 4 wire 저항의 기울기를 이용하여 히터 저항의 온도계수 값을 구할 수 있다. EXG glass와 polyimide의 히터 저항의 온도계수 값은 각각 0.0021, 0.00182 K^{-1} 으로 계산되었다.

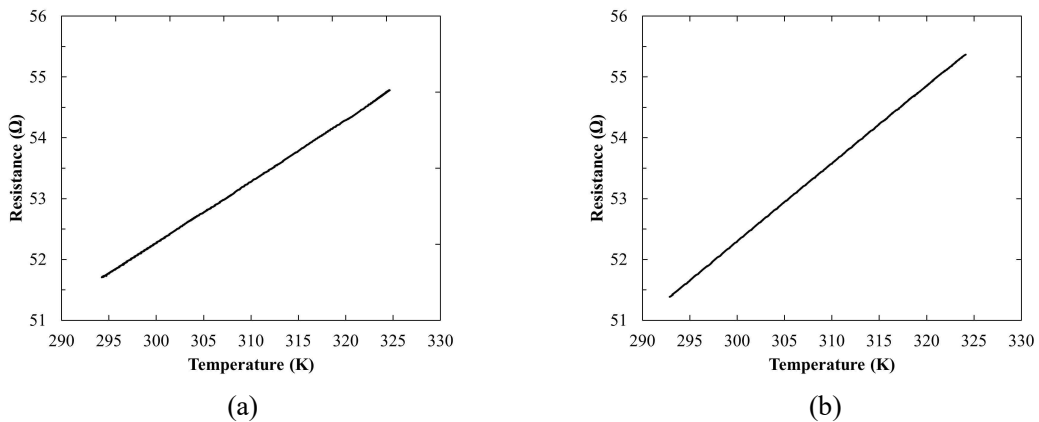


Figure 3-5 Relationship between temperature and resistance of the (a) EXG glass, 3ω sensor heater and (b) polyimide 3ω sensor heater

제 2 절 나노유체 제조

이번 3장 2절에서는 나노유체의 제조 방법에 관해서 설명한다. 나노유체는 바탕 유체와 나노입자의 조합에 따라 다양한 종류로 제조할 수 있다. 그리고 나노유체를 제조하는 방법에는 초음파 진동기, 고전단혼합기 이용한 물리적이고 계면활성제 첨가, pH의 제어 등의 화학적 방법들이 있다. 바탕유체와 나노입자의 조합과 제조 방법들을 포함하여 나노유체를 제조한다면 셀 수 없이 많은 종류의 나노유체를 만들 수 있다. 하지만, 본 실험에서는 입자의 화학적 성질이 입자 간의 간섭을 만들어 스톱스 법칙에 영향이 있을 것으로 예상되어 화학적인 방법은 사용하지 않았고 나노유체 연구에서 보편적으로 사용되는 물질인 Al_2O_3 와 DI-water를 사용하였다 [17-19]. Al_2O_3 나노입자는 RND Korea에서 제작되었으며, 입자크기와 모양은 실험 시간과 조건을 고려하여 200 nm, 원형에 가까운 alpha 타입으로 선정하였다.

그리고 시약병 250 mL에 DI-water 100 mL를 먼저 넣고 Al_2O_3 나노입자를 농도에 맞게 넣었다. 분산을 위해 물리적인 방법인 교반기와 초음파 분산기를 이용하였는데, 분산 방법에 따라 분산안정성 차이를 확인하기 위해 교반기만 사용하여 분산하는 방법, 교반기와 초음파 분산기를 동시에 사용하여 분산하는 방법이 두 가지 방법으로 제조하였다. 교반기는 분당 350 rpm 회전하며, 초음파 분산기는 40 kHz 이상의 고주파수에서 분산을 진행하였다. 그리고 초음파 분산기는 작동 중에 열이 발생하는데, 이를 수조에 새로운 물을 계속 공급하여 온도를 유지했다. 분산이 끝난 나노유체는 곧바로 마이크로 피펫으로 75 μ L를 샘플링하였다. 샘플링 과정에서는 혹시 모를 나노유체 내부의 농도 구배 때문에 정중앙에서 채취하였다. 또한, 분산이 끝나고 샘플링하여 3 ω 센서 위에 올려 실험실 할 때까지 최대 1 min을 넘지 않도록 하였다. 이는 입자의 응집 및 침전 현상은 분산이 끝난 직후에 바로 이루어지기 때문이다. 그리고 대기시간 후 실험은 바닥 부분에 입자들이 침전되어 나노유체 내의 농도구배가 발생할 것으로 예측해 손으로 가볍게 흔들어 부유한 후 샘플링하였다. Table. 3-1은 실험을 위해 제작된 나노유체의 제조 방법을 표기하였다.

첫 번째로 분산 방법, 농도, 분산 시간에 따라 분산안정성을 평가하기 위해 분산 방법은 교반기만 사용하는 방법과 교반기와 초음파 분산기를 동시에 사용하는 방법으로 나누고 농도는 0.1, 0.2, 0.3 vol. %, 분산 시간은 5, 15, 30, 60, 120 min으로 총 30개의 나노유체를 제조하여 실험하였다. 두 번째로 분산 후에 나노유체가 분산안정성을 얼마나 유지하는지 확인하기 위해 교반기와 초음파 분산기를 동시에 사

용하여 0.3 vol. % 농도의 나노유체를 각각 15, 120 min 분산한 나노유체를 0, 2, 4, 8, 16, 24, 48 hr 대기한 후 실험하였다.

Table 3-1 Nanofluid manufacturing method

Type of experiment	Dispersion method	Concentration (vol. %)	Dispersion time (min)	Waiting time (hr)
Experiment after dispersion	stirrer, stirrer and ultrasonic bath	0.1, 0.2, 0.3	5, 15, 30, 60, 120	-
Experiment after waiting	stirrer and ultrasonic bath	0.3	15, 120	0, 2, 4, 8, 16, 24, 48

제 3 절 실험방법

1. 기판과 액체의 열전도도 측정

이번 장에서는 기판과 액체의 열전도도를 측정하는 방법에 대해 설명한다. 먼저 제작된 3ω 센서에서 온도진폭 신호를 얻기 위해서 lock-in amplifier, op-amp로 이루어진 차동증폭기 전자회로가 제작하였다. 앞서 설명한 별도의 실험으로 온도에 따른 히터의 저항 변화를 측정하였다.

기판의 열전도도를 측정하는 방법은 먼저 3ω 센서를 50 Pa로 유지되는 진공챔버에 위치시킨 후에 이루어졌다. 기판이 아닌 공기로 열전달이 되는 것을 막기 위함이다. 진공챔버 내에 센서의 접촉 패드와 전기적으로 연결된 프로브들을 통하여 lock-in amplifier에서 1.0 ~ 1.5 V 교류전류를 인가하고, 3ω 전압 신호를 측정하였다. 기판의 정확한 열전도도 측정을 위해 1 ~ 8000 Hz 사이 주파수를 변화시키면서 3ω 전압의 amplitude와 phase lag를 기록하였다. 또한, 측정된 실험값과 이론값들의 최소자승법을 통하여 가장 오차가 작은 열전도도 값을 계산하여 기판의 열전도도를 구하였다.

액체의 열전도도를 측정하기 위해서는 센서 위에 액체를 올려야 한다. 그래서 액체를 담을 용기가 필요하다. 액체를 담을 용기는 앞서 말한 PDMS로 제작하였다. 센서 위에 PDMS를 붙인 뒤 그 안에 액체를 주입하였다. 주입한 액체는 증발을 막기 위해 커버 글라스를 이용하여 덮어놓았다. 액체의 열전도도 측정도 마찬가지로 1 ~ 8000 Hz 사이 주파수를 변화시키면서 3ω 전압의 온도진폭과 위상지연 값으로 기록하고 측정된 실험값과 이론값들의 최소자승법을 통하여 가장 오차가 작은 열전도도값을 계산하였다.

2. 나노유체 침전 실험

나노유체 침전 실험방법은 앞서 말한 열전도도 측정 방법과 약간의 차이가 있다. 열전도도 측정 방법은 주파수를 1 ~ 8000 Hz를 바꾸어 가면서 측정하였지만, 침전 실험은 한 주파수에서 고정하고 시간에 따라서 온도진폭 변화를 관찰하여야 한다. 그래서, 모든 실험의 주파수는 125 Hz로 고정하였고, lock-in amplifier에서 1.5 V의 전압을 인가하였다. 온도진폭의 최대값은 1°C 이하로 설정하였는데, 이는 나노유체 내부에서 자연대류가 발생하지 않기 위함이다. 자연대류는 $Ra_L \leq 1708$ 일 때, 가벼운 유체가 항상 무거운 유체 위에 존재하기 때문에 생기지 않는다고 알려져 있는데 계산한 바로는 $Ra_L=0.09$ 이다. 그리고 time constant는 3ω 신호의 오차 때문에 1 s로 설정하였다. 이때의 TPD는 9.5 μm 이다. 3ω 전압은 DAQ를 이용하여 3 s에 한 번씩 기록하였다.

제 4 장 기판과 액체의 열전도도 측정 실험

제 1 절 기판의 열전도도 측정

이번 절에서는 양방향 전도열전달을 이용한 3ω 방법 적용을 위한 EXG glass와 polyimide 기판의 열전도도를 측정하였다. 시편의 열전도도를 측정하기 위해서는 센서 기판의 정확한 열전도도 측정이 필요하다. Fig. 3-2에서 보았던 기판을 진공 챔버에 위치시키고, 진공펌프를 이용하여 챔버 안의 기압을 50 Pa 이하로 유지시켰다. 그리고 lock-in amplifier에서 1.0 V의 전압을 인가하고, 입력주파수를 1 ~ 8000 Hz 바꾸어 가면서 온도진폭을 측정하였다. 이때의 발열량은 EXG glass에서는 0.00151 W, polyimide에서는 0.00154 W이다. Fig. 4-1은 EXG glass 기판의 주파수에 따른 온도진폭변화 실험 그래프와 열전도도 값으로 피팅한 그래프이다. 각 주파수에서 최소자승법으로 피팅한 결과 EXG glass는 1.13 W/mK, polyimide는 0.31 W/mK으로 측정되었다. 계산식은 Cahill이 제안한 식 (2.6)을 사용하였다.

EXG glass와 polyimide 실험값을 비교하면 polyimide의 온도진폭이 EXG glass의 온도진폭보다 높게 측정되었다. 이는 같은 전압을 인가했을 때 EXG glass의 열전도도가 polyimide의 열전도도보다 높기 때문이다. 기판의 열전도도가 높으면 히터에서 발생한 열을 주변으로 더 빠르게 전달되기 때문에 열전도도가 높을수록 온도진폭은 낮다. 또한, EXG glass 경우에는 1 Hz부터 8000 Hz 구간에서 실험식과 이론식의 평균 오차가 2.1%로 일치하였다. 하지만 polyimide 경우에는 5.3%로 다소 높은 평균 오차를 보인다. 이는 polyimide 기판의 얇은 두께 때문으로 사료된다. polyimide 기판의 두께는 73 μm 인데, Fig. 4-2와 비교해 보면 낮은 주파수에서는 TPD 범위가 polyimide 기판의 두께보다 깊다. 반면에 EXG glass의 경우에는 0.7 mm로 낮은 주파수에서도 측정이 가능한 충분한 두께이기 때문에 모든 구간에서 선형적이다.

낮은 열전도도 소재의 정확한 열전도도 측정을 위해서는 polyimide 기판을 사용하는 것이 유리하다. 하지만, 기존 Cahill 식에서 무시되어온 요소들을 고려해야 할 수도 있다. 이에 관한 자세한 설명은 3절에서 하겠다.

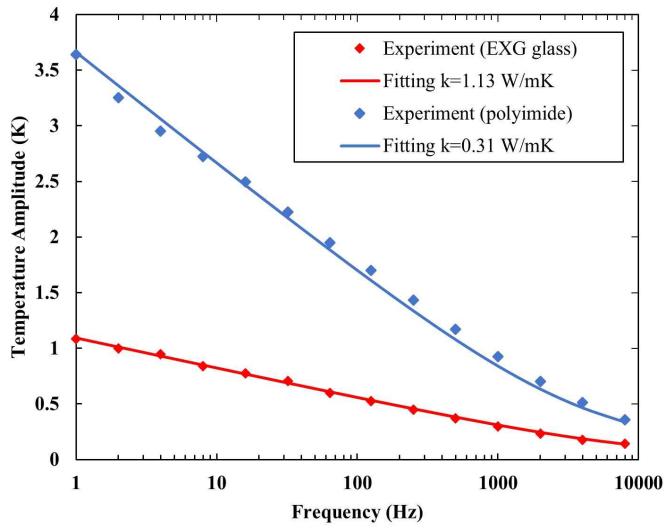


Figure 4-1 Temperature amplitude of EXG glass and polyimide film measured from frequency 1 Hz to 8000 Hz

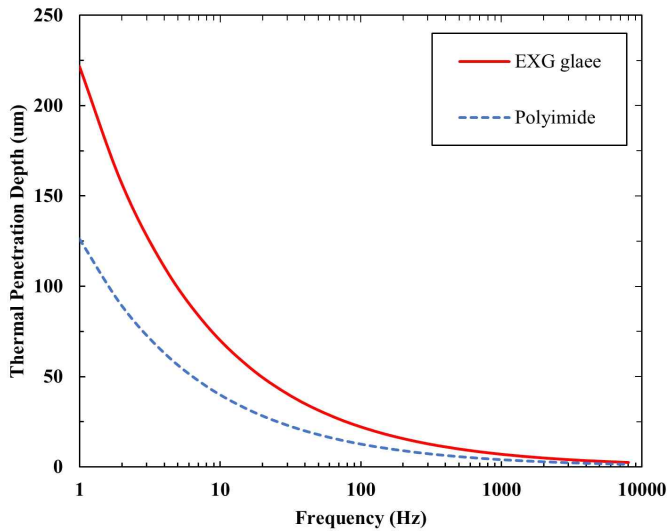


Figure 4-2 Thermal penetration depth of EXG glass and polyimide film from frequency 1 Hz to 8000 Hz

제 2 절 액체의 열전도도 측정

양방향 전도열전달 3ω 방법을 이용하여 DI-water와 Ethylene glycol의 열전도도를 EXG glass를 이용하여 측정하였다. 3ω 센서 위에 액체를 담기 위해서 Fig. 3-3과 같이 따로 제작한 PDMS 용기를 제작하였다. 앞선 실험과 마찬가지로 입력주파수를 1 ~ 8000 Hz 바꾸어 가면서 온도진폭을 측정하였다. Fig 4-3은 DI-water와 Ethylene glycol의 주파수에 따른 온도진폭변화 실험 그래프와 식 (2.14)로 피팅한 그래프이다. 각 주파수에서 최소자승법으로 피팅한 결과 DI-water의 열전도도는 0.605 W/mK, ethylene glycol은 0.257 W/mK으로 측정되었다. DI-water와 ethylene glycol의 열전도도 문헌값은 0.607 W/mK, 0.254 W/mK이다. 측정한 결과와 비교해 보았을 때 문헌값과 잘 일치하는 것으로 나타났다.

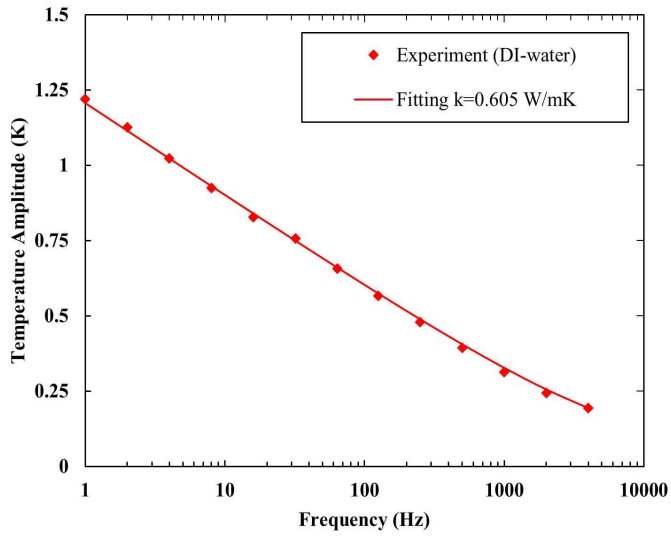


Figure 4-3 Temperature amplitude of DI-water measured from frequency 1 Hz to 8000 Hz

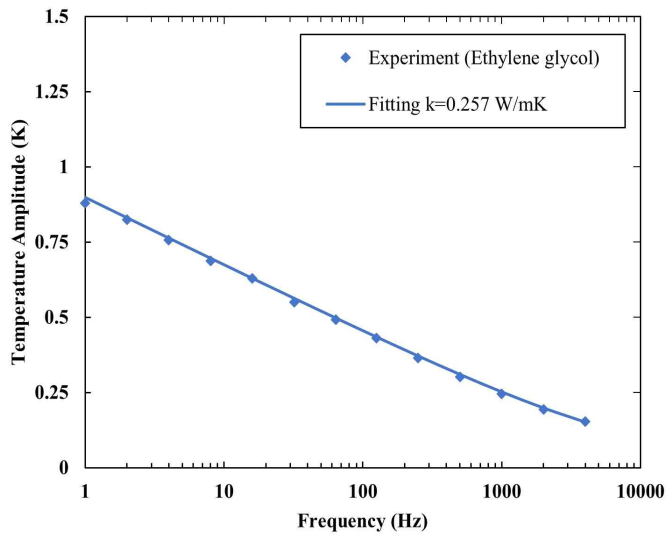


Figure 4-4 Temperature amplitude of ethylene glycol measured from frequency 1 Hz to 8000 Hz

제 3 절 히터의 두께와 접촉열저항 분석

이번 장에서는 양방향 전도열전달을 이용한 3ω 방법 적용을 위한 EXG glass와 polyimide 기판 위에 증착된 미소히터에 대한 열전달 분석을 진행하였다. Cahill이 제안한 3ω 방법의 기본적인 이론식에서 무시되었던 미소히터의 두께와 기판과 미소히터 사이의 접촉열저항이 온도진폭 및 위상지연에 미치는 영향을 분석하였다. 미소히터의 두께와 접촉열저항을 고려한 이론식들과 2차원 전도열전달 수치해석을 통해 얻은 온도진폭과 위상지연 해석값들을 실험값과 비교하였다.

측정된 실험값들은 식 (2.5), (2.9), (2.10)과 COMSOL 해석을 통해 도출된 결과값들과 비교하였다. 또한, 실험값과 이론값들의 최소자승법을 통하여 가장 오차가 작은 열전도도 값을 계산하여 기판의 열전도도를 구하였다. 미소히터의 두께와 미소히터와 기판 사이의 접촉열저항을 고려한 이론식들의 차이를 확인하기 위하여 먼저 식 (2.5), (2.9), (2.10) 에 의해 구한 온도진폭과 위상지연을 각각 식 (2.6)의 결과와 나눈 값을 Fig. 4-5, 4-6 에 나타냈다 [21]. 모든 이론식에 EXG glass와 polyimide의 물성으로 Table. 4-1에 표시한 문헌값을 사용하였다. Fig. 4-5 (a)와 (b)는 각각 미소히터가 EXG glass 기판 위에 놓여있을 때의 온도진폭과 위상지연 비를 표시하였다. Fig. 4-6 (a)와 (b)는 각각 미소히터가 polyimide 기판 위에 놓여있을 때의 온도진폭과 위상지연 값의 비를 표시하였다.

히터의 두께와 접촉열저항은 기판의 종류와 상관없이 식(2.6) 대비 5% 이하의 차이를 보이는 것으로 나타났다. 기판에 상관없이 미소히터의 두께와 열용량을 고려한 이론식과 그렇지 않은 식 (2.6)의 차이는 모두 1% 미만의 차이가 있다. 비록 작은 차이지만, 주파수가 증가할수록 그 차이가 증가하는 것을 확인하였다. 이것은 주파수가 증가할수록, 미소히터에서 발생한 발열파형이 기판 내부로 TPD가 감소하기 때문이다. TPD가 감소하면, 기판의 열물성과 비교하여 미소히터 자체의 열물성이 온도진폭에 보다 큰 영향 가지게 된다. 이 때문에 온도진폭과 위상지연 값 모두 주파수가 증가할수록 미소히터 두께를 감안하지 않은 식 (2.6) 과 차이가 증가하는 것으로 나타났다.

위와 같은 해석은 식 (2.9), (2.10)을 통하여 미소히터와 기판 사이의 접촉열저항을 고려하였을 때도 동일하게 적용될 수 있다. 일반적으로 sputter를 이용하여 증착된 미소히터와 기판 사이의 접촉열저항은 $10^{-8} \text{ m}^2\text{K/W}$ 수준으로 알려져 있다. 이 수준의 접촉열저항을 가지는 경우, 접촉열저항이 0인 경우를 비교하면, 온도진폭과 위

상지연 값에 0.5% 미만의 차이를 보인다. 만약 기판과 미소히터의 접촉이 좋지 않아, 미소히터와 기판 사이 접촉력이 반 데르 발스 수준이라고 한다면 접촉열저항은 $\sim 10^{-7} \text{ m}^2\text{K/W}$ 이라고 가정할 수 있다. 이와 같이 극단적으로 미소히터와 기판 사이 접촉이 안 좋다고 가정할 경우에는 식 (5)와 다른 이론식들의 차이가 커지며, 최대 5%까지의 차이를 보이는 것으로 나타났다.

온도진폭 해석값을 계산하기 위하여 미소히터와 기판의 2차원 단면을 해석모델로 설정하였다. 다음 장에서 기술할 실험과 동일한 조건으로 2차원 전도열전달을 해석하기 위해, 기판은 EXG glass와 polyimide film의 너비와 두께로 각각 모델을 구축하였다. EXG glass 기판의 경우에는 폭이 1 mm, 높이가 0.7 mm이며 polyimide 기판의 경우에는 폭은 1 mm, 높이가 0.073 mm이다. 두 경우 모두 미소히터의 폭은 10 μm , 두께는 250 nm인 Au 금속히터로 설정하였다. 모든 측정은 진공상태에서 이루어졌기 때문에 기판의 윗부분과 히터의 윗부분을 단열 경계조건이 부여되었다. 기판의 바닥 면과 옆면들의 온도는 293 K로 설정하였다. 미소히터에 sine 함수의 발열량을 경계조건으로 인가되었으며, 미소히터의 온도진폭과 위상지연을 sine 함수 curve fitting을 통하여 계산하였다. 계산된 이론식들과 COMSOL 계산을 통한 heating frequency에 따른 온도진폭과 위상지연은 실험값과 비교하였다.

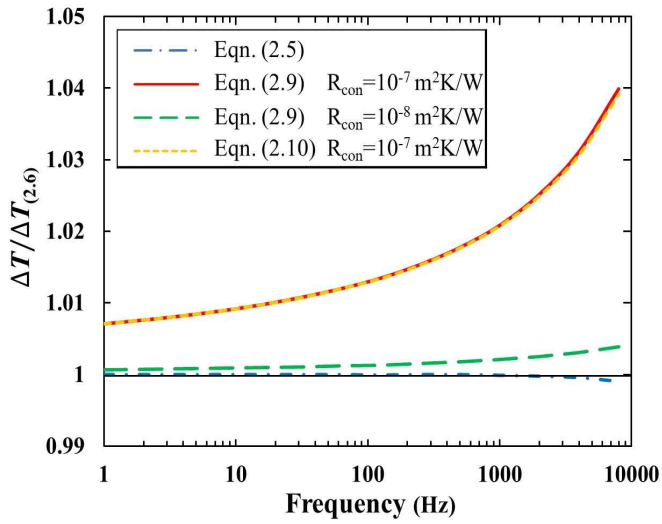
앞서 언급된 이론식과 COMSOL 해석에는 Table. 4-1에 표시된 EXG glass, polyimide 및 Au의 물성들이 사용되었다. Fig. 4-7, 4-8에는 COMSOL을 이용하여 미소히터와 기판 간의 2차원 전도열전달을 고려하여 해석한 온도진폭과 위상지연을 식 (2.6)과 비교한 결과를 표시하였다 [21]. Fig. 4-7과 마찬가지로, COMSOL 소프트웨어에서 인위적으로 미소히터와 기판 사이에 접촉열저항을 0, $10^{-7} \text{ m}^2\text{K/W}$ 과 $10^{-8} \text{ m}^2\text{K/W}$ 로 설정한 3가지 경우를 비교하였다. 식 (2.6)과 COMSOL 해석 결과는 꽤 큰 차이를 나타내는 것으로 나타났다. 특히 온도진폭을 비교한 Fig. 4-7 (a)와 Fig. 4-8 (a)을 보면, COMSOL을 통하여 계산된 결과는 식 (2.6) 대비하여 낮은 주파수에서는 낮게, 높은 주파수에서는 높게 나오는 것으로 확인되었다. Fig. 4-7 (b)와 Fig. 4-8 (b)에 표시된 위상지연 값의 비율의 경우 온도진폭보다 차이는 증가한다. 위상지연의 경우 최대 23%까지 COMSOL 결과가 식 (2.6) 결과와 차이가 나는 것으로 나타났다. 접촉열저항에 따른 온도진폭과 위상지연 해석 결과의 경우 앞선 이론식들의 비교 결과와 비슷한 경향을 나타냈다. 접촉열저항이 없는 경우와 $10^{-8} \text{ m}^2\text{K/W}$ 로 설정한 경우는 서로 1% 내의 차이를 나타냈으나, $10^{-7} \text{ m}^2\text{K/W}$ 인 경우는 최대 5% 차이를 보였다. Fig. 4-9는 실험을 통하여 측정된 온도진폭과 위상지연을 이론

식과 COMSOL 해석 결과와 비교하였다 [21]. Fig. 4-9에서는 온도진폭 실험값과 비교하여 가장 작은 오차를 가지는 열전도도로 계산된 이론값 및 해석값들을 실험값과 같이 도시하였다. 기판의 종류와 상관없이 식 (2.5), (2.6), (2.9)을 통하여 구한 온도진폭 값은 미소히터의 두께 및 접촉열저항에 무관하게 문헌값이 이론값들과 잘 일치하는 것으로 나타났다. 반면 COMSOL 해석을 통하여 계산된 기판의 열전도도 경우에는 이론값들 대비 EXG glass는 5% 낮게, polyimide는 1% 정도 높게 계산되었다. 미소히터의 두께, 미소히터와 substrate 사의 접촉열저항을 고려하지 않고도 온도진폭 비교를 통하여 EXG glass와 polyimide 기판의 열전도도를 5% 이내의 오차로 측정할 수 있음을 확인하였다.

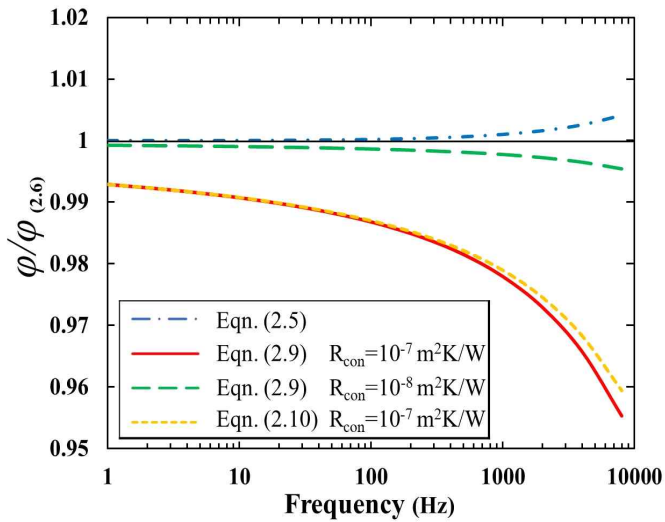
반면 위상지연 실험값, 이론값들 및 COMSOL 해석값들 간의 차이는 온도진폭보다 큰 것으로 나타났다. 특히 주파수가 100 Hz 이상 영역에서 이론식들과 COMSOL 해석값의 차이가 더 벌어졌으며, 실험값은 polyimide 기판의 경우 EXG 기판의 경우보다 그 차이가 2배 이상 되었다. 위상지연 실험값과 이론값들의 차이의 원인은 현재로서 파악되지 않는다. 추후 보다 정확한 미소히터의 형상 모델링, Ti/Au 미소히터의 실제적인 열물성 적용, 3차원 전도열전달 해석 등을 통하여 위상지연 실험값과 해석값 사이의 오차를 줄이는 연구를 수행할 계획을 하고 있다.

Table 4-1 Thermal properties of EXG glass, polyimide and Au heater

Material	Thermal conductivity (W/mK)	Density (kg/m ³)	Heat capacity (J/kgK)
EXG glass	1.09	2380	768
Polyimide	0.31	1420	1090
Au	61	16348	205

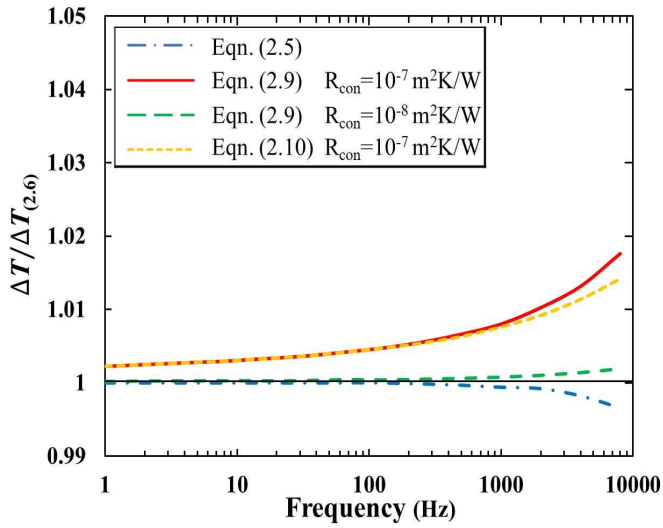


(a)

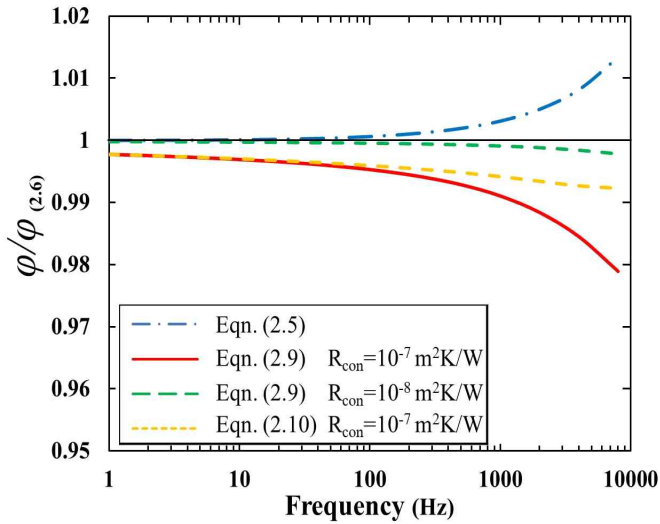


(b)

Figure 4-5 Ratios of temperature amplitude and phase lag based on interfacial thermal resistance calculated using theoretical equations and Equation (2.6) (a) Temperature amplitude of EXG glass substrate and (b) phase lag of EXG glass substrate

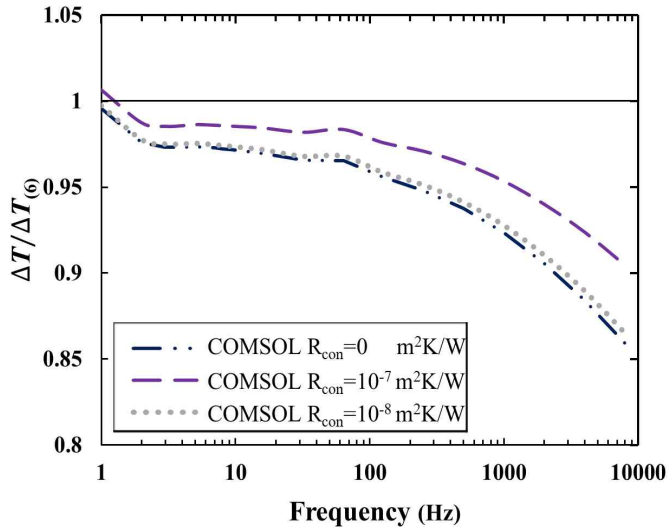


(a)

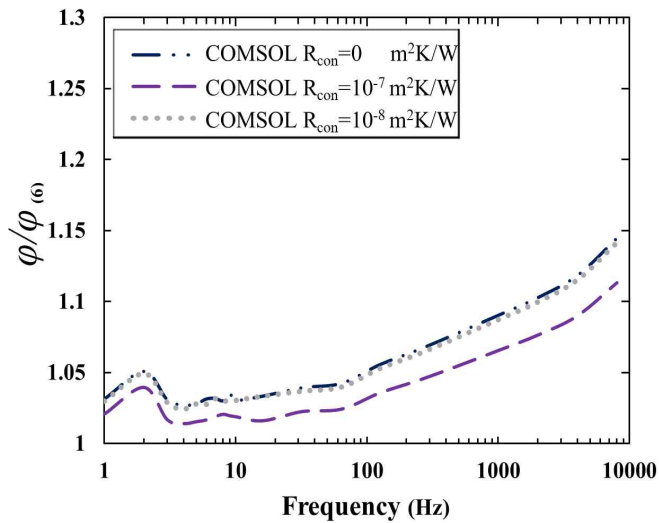


(b)

Figure 4-6 Ratios of temperature amplitude and phase lag based on interfacial thermal resistance calculated using theoretical equations and Equation (2.6) (a) Temperature amplitude of polyimide substrate and (b) phase lag of polyimide substrate

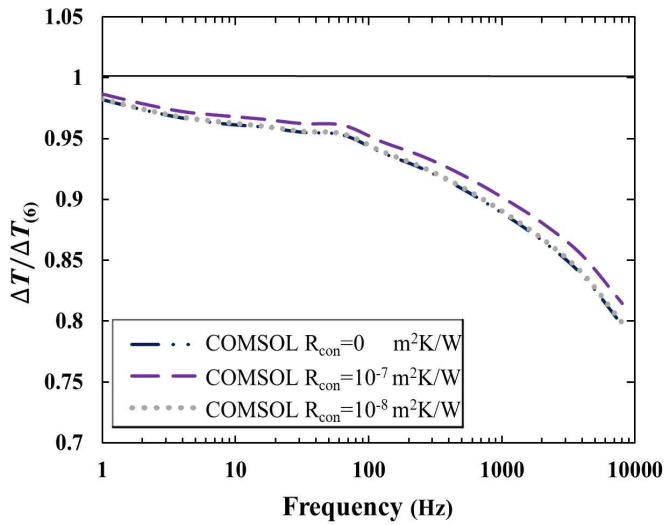


(a)

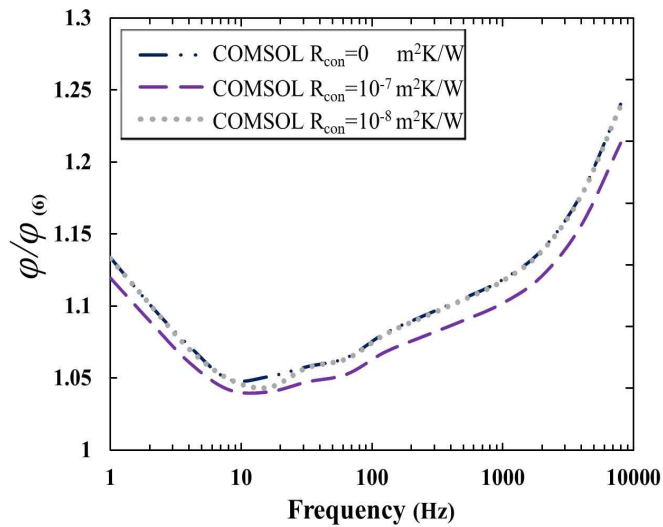


(b)

Figure 4-7 Ratios of temperature amplitude and phase lag based on interfacial thermal resistance calculated through COMSOL analysis and Equation (2.6) (a) Temperature amplitude of EXG glass substrate and (b) phase lag of EXG glass substrate

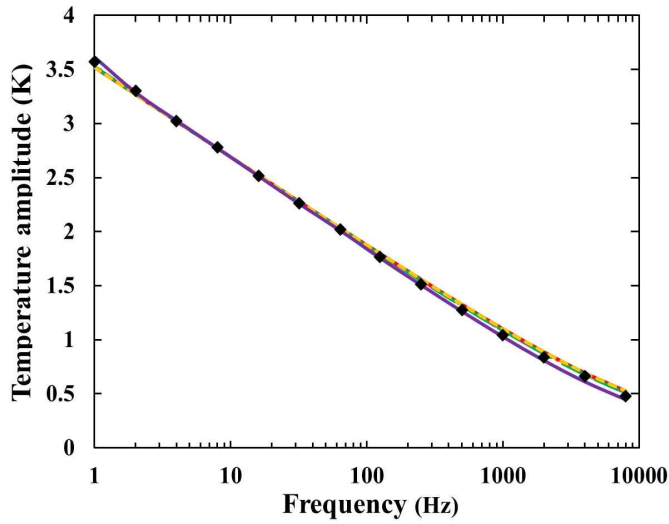


(a)

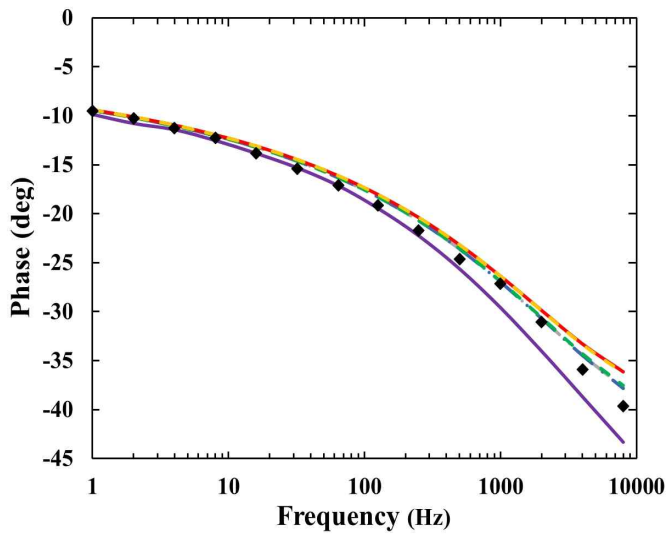


(b)

Figure 4-8 Ratios of temperature amplitude and phase lag based on interfacial thermal resistance calculated through COMSOL analysis and Equation (2.6) (a) Temperature amplitude of polyimide substrate and (b) phase lag of polyimide substrate



(a)



(b)

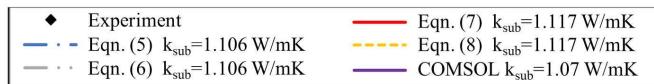
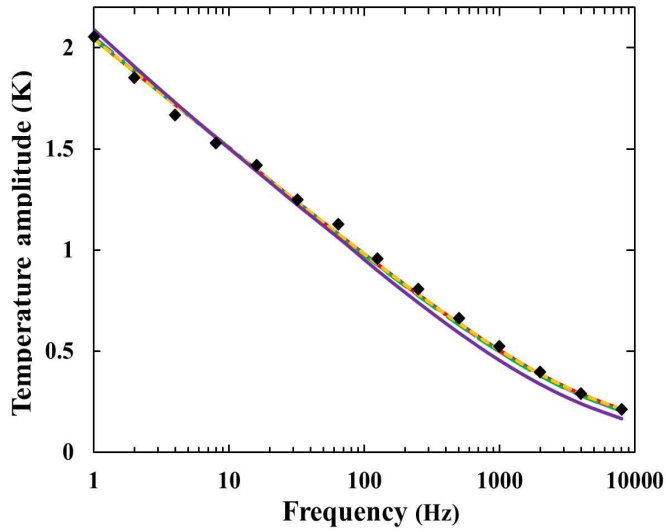
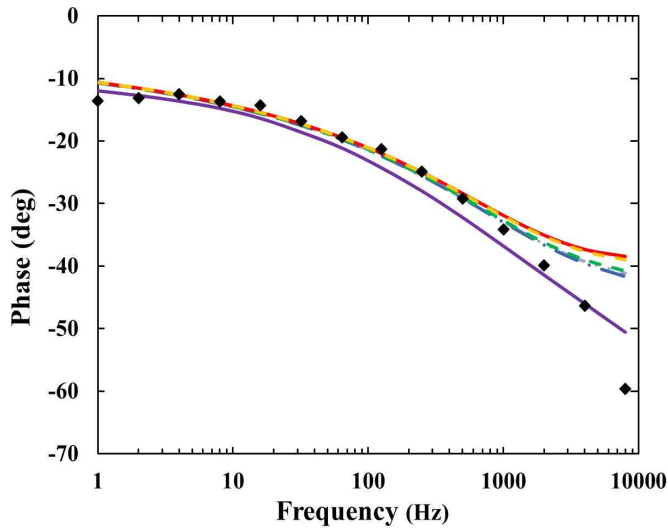


Figure 4-9 Comparison among experimental, theoretical, and analytical values; thermal conductivity obtained using least-squares method (a) Temperature amplitude of EXG glass substrate and (b) phase lag of EXG glass substrate



(a)



(b)



Figure 4-10 Comparison among experimental, theoretical, and analytical values; thermal conductivity obtained using least-squares method (a) Temperature amplitude of polyimide substrate and (b) phase lag of polyimide substrate

제 5 장 나노유체 분산안정성 평가 실험

제 1 절 DI-water, 나노유체의 침전 비교

이론값이 실제 실험값과 얼마나 일치하는지 확인하기 위해 DI-water와 나노유체의 시간에 따른 이론값과 실험값을 비교하였다. Fig. 5-1은 DI-water와 나노유체의 시간에 따른 온도진폭 실험값과 평균 입자크기 800 nm를 가진 나노유체의 시간에 따른 온도진폭 이론값을 표시한 그림이다. 실험에서 사용된 나노유체는 Al_2O_3 200 nm와 DI-water를 0.2 vol. %로 혼합하여 120 min 동안 교반기와 초음파 분산기를 이용하여 분산하였다. 분산된 나노유체는 3ω 센서 위에 올려져 125 Hz에서 200 s 마다 측정하였다.

DI-water는 시간에 따라서 온도진폭이 변하지 않았으며, 나노유체의 경우에는 침전으로 인해 시간에 따라 온도진폭이 낮아지는 것으로 확인되었다. 식 (2.15) 에 의하여 계산된 DI-water의 온도진폭과 실험값 모두 0.61 K으로 유효자리 내에서 일치하는 것으로 나타났다. 나노유체는 실험 시작부터 1000 s까지 급격한 감소를 하다가 점차 감소 폭이 줄어들어 3400 s 이후에는 4000 s에서의 온도진폭에 99%에 해당하는 값으로 수렴되었다. 나노유체의 실험값과 이론값은 3가지 차이가 있었다.

첫 번째로, 온도진폭 기울기의 차이가 있었다. Al_2O_3 나노입자가 200 nm일 때 스톡스 법칙에 의해 침전이 완료되는 시점은 13 hr으로 예상되었다. 하지만, 실험결과에서는 정확하게 침전이 끝나는 시간을 알 수는 없지만, 대략 3000 s에서 침전이 끝나는 것으로 나타났다. 이론적으로만 봤을 때 계산값보다 10배 이상 빨리 침전되었다. 이런 결과값은 파우더 형태에서는 200 nm이지만 액체에 분산했을 때에는 200 nm 완전히 분산되지 못한 입자들이 엉겨 붙은 상태로 존재하기 때문으로 사료된다. 또한, 기울기의 차이는 입자크기뿐만 아니라 농도에 대해서도 차이가 생길 수 있는데, 제조된 나노유체에서 실험을 위해 샘플링 하는 도중에 농도의 차이가 생길 수도 있다. 두 번째로, 정확한 시작점을 알 수가 없었다. 이는 lock-in amplifier에서 time constant를 1 s로 설정하고, DAQ에서 3 s마다 측정을 하였기 때문에 실험 시작 첫 수십 s에 대한 정보에 오류가 있었다. 세 번째로, 침전이 끝나는 시간과 끝났을 때 온도진폭 값이 이론값과 실험값에 차이가 있었다. 이는 침전이 완료된 나노입자 층의 공극률과 입자크기 때문으로 판단된다. 예를 들면, 균일한 200 nm 입자만 있다고 가정했을 때 최대 공극률은 47.7%이다. 이 공극률은 완전히 촘촘하게

쌓여 있기 때문에 입자들이 깨지지 않는 이상 더 이상 줄어들지 않는다. 다만, 입자의 분산성에 따라 공극률이 늘어날 수는 있는데, 입자들이 분산되지 못하고 엉겨 붙어 침전된다면 그만큼 공극률이 늘어난다. 즉 같은 농도에서 침전이 끝났을 때의 온도진폭이 낮다는 것은 분산이 잘되어 입자 하나씩 침전되어 침전된 나노입자 층이 매우 촘촘한 것을 의미이며, 침전이 끝났을 때 온도진폭이 높다는 것은 분산되지 않은 큰 입자들이 존재하여 입자층이 높은 공극률을 갖는다.

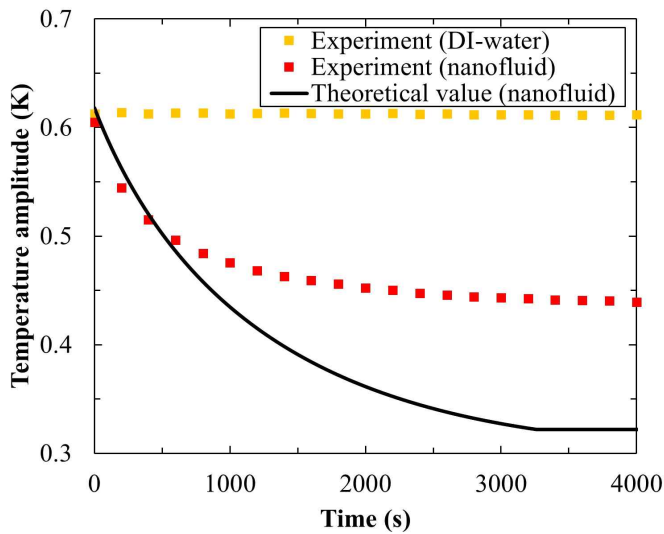


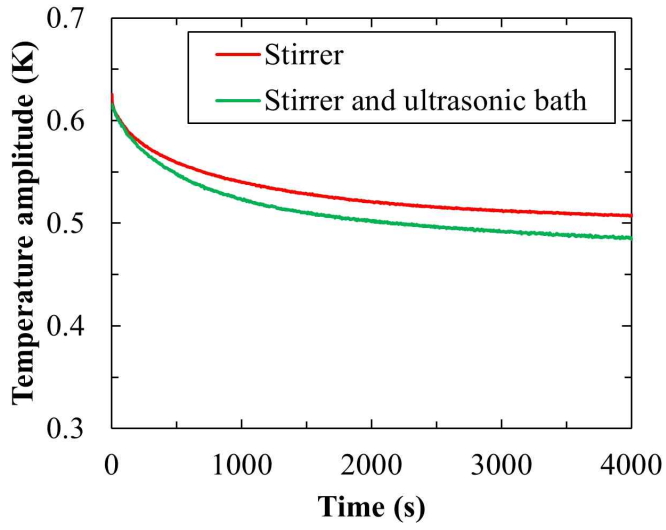
Figure 5-1 The experimental value of temperature amplitude of DI-water, nanofluid over time and The theoretical value of temperature amplitude of nanofluid with a particles size of 800 nm

제 2 절 분산 방법에 따른 분산안정성 평가

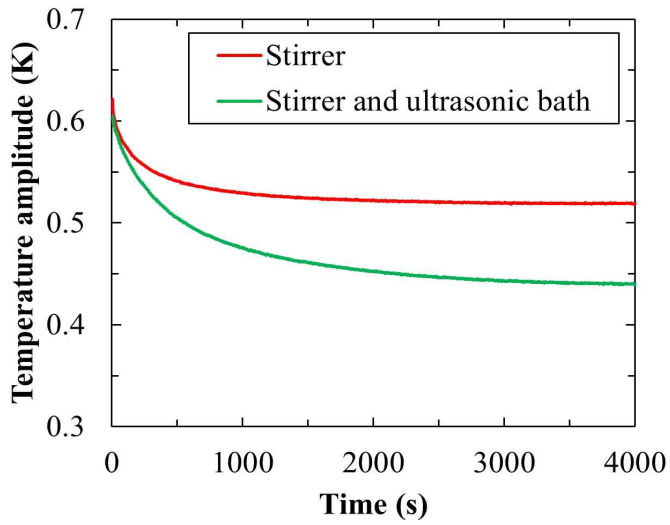
이론값과 다른 온도진폭의 기울기, 끝점을 해석해서 실험결과를 설명한다. 분산 방법에 따른 분산안정성의 차이를 확인하기 위해 농도 0.1, 0.2, 0.3 vol. %의 나노 유체를 교반기만 이용한 방법과 교반기와 초음파 분산기를 동시에 이용한 방법으로 120 min 분산한 실험값을 Fig. 5-2에 나타냈다. 먼저 침전이 완료되었을 때 입자층의 두께, 열전도도를 계산하고 DT를 이론식을 이용해서 구하였다. 모두 완전히 쌓여 있을 때인 47.7%의 공극률로 계산하였을 때 입자층의 열전도도는 2.35 W/mK이며 두께는 0.1, 0.2, 0.3 vol. %에서 각각 7.3, 14.6, 21.9 μm 이다. 이를 이론식에 대입하여 DT를 계산하면 0.382, 0.322, 0.306 K로 계산된다.

모든 농도에서 교반기만 이용한 방법보다 교반기와 초음파 분산기를 이용한 방법으로 분산한 나노유체의 끝점이 낮게 측정되었다. 이를 통해 교반기보다 교반기와 초음파 분산기를 모두 이용하여 분산하는 방법이 나노유체의 분산안정성을 높이는 방법이다. 그리고 각각의 농도에서 교반기만 사용한 방법과 교반기와 초음파 분산기를 이용한 방법의 끝점을 비교해 보았을 때, 그 차이는 점점 벌어진다. 높은 농도에서 교반기와 초음파 분산기 모두 이용하여 분산하는 것이 더 효과적이다. 그리고 교반기와 초음파 분산기를 모두 사용하는 방법은 농도가 높아짐에 따라 끝점도 낮아진다. 농도가 높을수록 더 많은 입자가 쌓이기 때문에 당연한 결과이다. 하지만, 교반기만 사용한 방법의 경우에는 0.1 vol. %보다 0.2 vol. %에서는 더 낮은 온도진폭을 보이지만, 0.3 vol. %에서는 온도진폭이 더 높아졌다. 이는 0.3 vol. % 교반기만 사용하는 방법으로는 분산이 되지 않아 공극률이 높아진 것으로 사료된다.

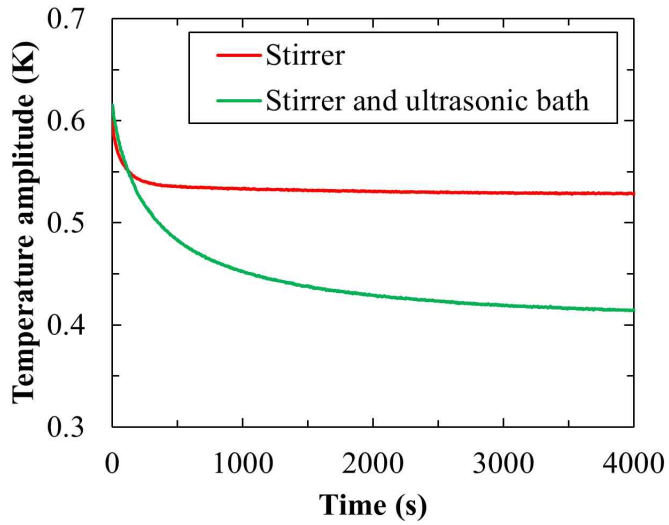
그리고 농도가 높아질수록 기울기도 높아지고, 끝점도 빨라진다. 800 nm가 3300 s에서 완전히 침전되는 것을 고려했을 때, Fig. 5-2 (a)는 3300 s 이후에도 온도진폭이 낮아지는 것으로 보아 800 nm보다 작은 입자들이 비록 적은 비율이지만 존재한다. Fig. 5-2 (b)는 3300 s 전후로 침전이 끝나는 것으로 보아 800 nm에 가까운 입자들이 있고, Fig. 5-2 (c)는 3300 s 훨씬 이전에 침전이 끝나므로 800 nm보다 큰 입자들의 비율이 높은 것으로 사료된다.



(a)



(b)

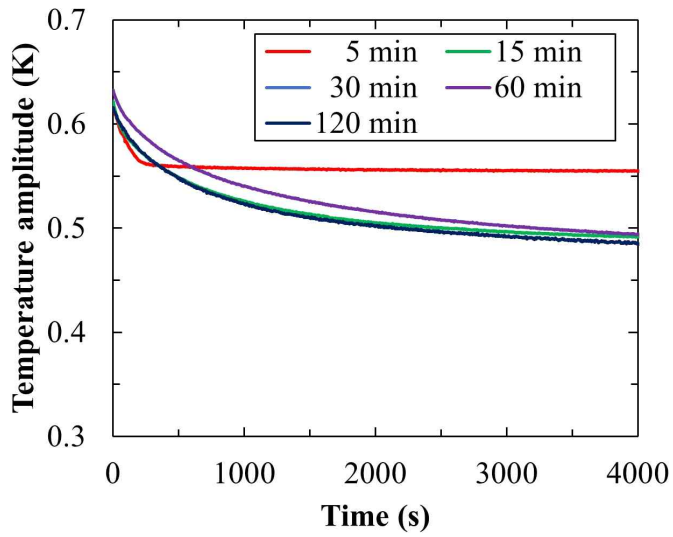


(c)

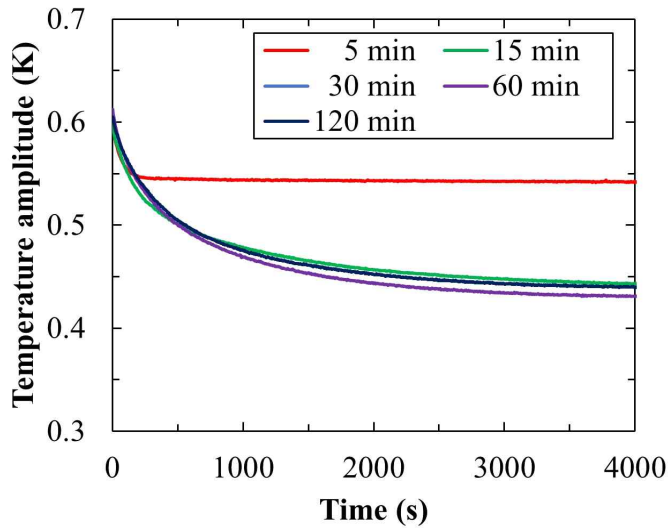
Figure 5-2 The experimental value of temperature amplitude of nanofluids dispersed 120 min using stirrer, stirrer and ultrasonic bath over time for (a) 0.1 vol. %, (b) 0.2 vol. % and (c) 0.3 vol. %

제 3 절 분산 시간에 따른 분산안정성 평가

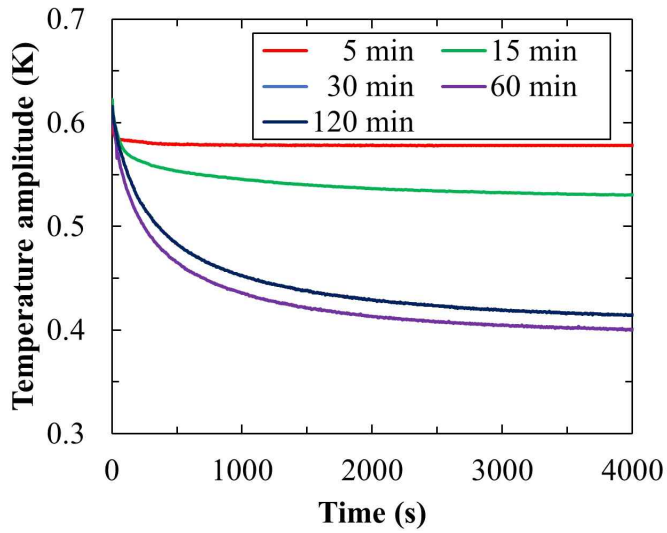
Fig. 5-3은 0.1, 0.2, 0.3 vol. % 농도를 가진 나노유체를 교반기와 초음파 분산기를 이용하여 분산한 방법으로 분산 시간 5, 15, 30, 60, 120 min에 따라 실험한 그래프이다. 같은 해석방법으로 Fig. 5-3 (a)는 5 min 분산을 제외한 나머지 분산 시간에서 온도진폭과 침전이 끝나는 시간이 유사하였다. 이를 통해 농도 0.1 vol. %의 나노유체는 15 min 이상 분산안정성을 확보할 수 있다. Fig. 5-3 (b) 또한 마찬가지로 5 min 분산을 제외한 나머지 분산 시간에서 온도진폭과 침전이 끝나는 시간이 유사하였다. 나노유체 0.2 vol. % 경우에는 15 min 이상 분산해야 분산안정성을 확보할 수 있다. Fig. 5-3 (c)는 5, 15 min 분산을 제외한 나머지 분산 시간에서 온도진폭과 침전이 끝나는 시간이 유사한 것으로 보아, 60 min 이상 분산해야 최소한의 분산안정성을 확보할 수 있다. 이와 같은 해석으로 분산 시간을 길게 할수록 분산안정성이 좋아지며, 일정 수준 이상으로는 좋아지지 않는 것을 확인하였다. 그리고 나노유체 농도 0.1, 0.2, 0.3 vol. %일 때의 분산안정성을 위한 최소한의 분산 시간은 각각 15, 15, 60 min이다.



(a)



(b)



(c)

Figure 5-3 The experimental value of temperature amplitude of nanofluid dispersed for 5, 15, 30, 60, 120 min using stirrer and ultrasonic bath over time (a) 0.1 vol. %, (b) 0.2 vol. % and (c) 0.3 vol. %

제 4 절 무차원화

단순히 온도진폭을 비교하는 방법으로는 분산안정성을 정성적으로 비교할 뿐 정량적으로 분산안정성을 측정할 수는 없다. 예를 들면, 교반기만 사용하는 방법보다 교반기와 초음파 분산기를 같이 사용하여 분산하는 방법이 분산안정성이 좋은지는 예상할 수 있지만, 상대적인 비교를 하기에 어려움이 있다. 또한, 분산 방법, 농도, 분산 시간에 대해서는 서로 비교하기에 어려움이 있다. 그래서 분산안정성의 정량적 측정을 위해 무차원화 하여 숫자 하나만을 가지고 평가하는 방법을 제안한다.

무차원화 과정의 설명을 돕기 위해 교반기와 초음파 분산기를 같이 사용한 분산 방법으로 농도 0.2 vol. %의 나노유체를 사용하였다. 실제 실험에서 다양한 오차들이 존재하였다. 첫 번째로는 센서의 저항이 저마다 최대 10% 정도의 차이가 보였으며, 이에 따라 온도진폭의 첫 시작점이 모두 일치하지 않았다. 그리고 3 s에 한 번씩 온도진폭을 측정하기 때문에 실험값의 처음 데이터가 정확한 첫 시작점이라고 보기 어려웠다. 두 번째로는 분산한 나노유체를 샘플링 하는 도중에 농도구배가 생길 수 있었다. 이러한 이유로 y축을 무차원화 함으로서 실험과정 중 오차가 발생하는 오차를 줄였다. y축을 무차원화 한 그래프는 Fig. 5-4 (a) 에 나타냈다.

$$DT^* = \frac{DT - DT_\infty}{DT_0 - DT_\infty} \quad (4.1)$$

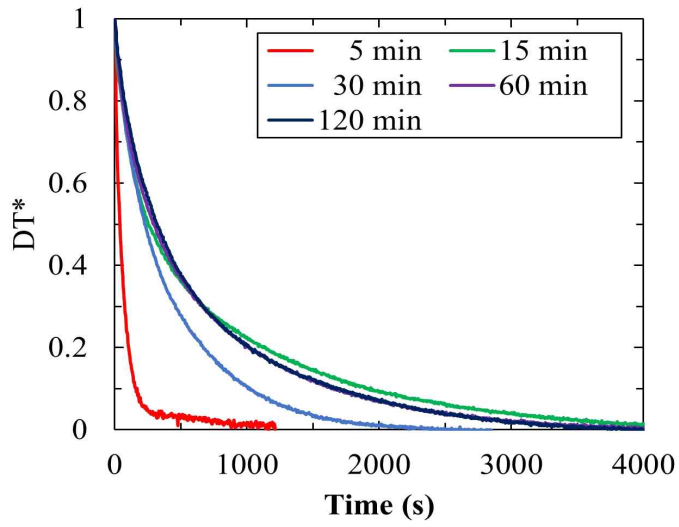
$$t^* = \frac{t}{t_\infty} \quad (4.2)$$

$$S = \frac{DT^* \times t^*}{1 - t^*} \quad (4.3)$$

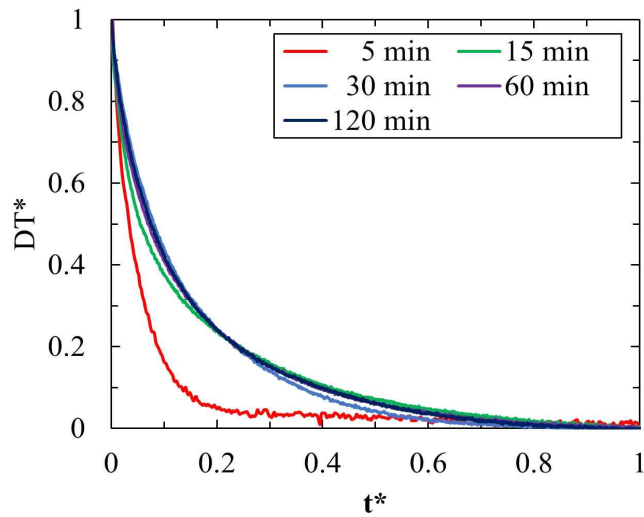
Fig. 5-4 (b)는 DT와 시간을 식 (4.1), (4.2)을 이용하여 무차원화 한 그래프이다. DT와 시간을 무차원화 함으로서 입자크기에 대한 오차를 줄일 수 있다. 여기서 t_∞ 는 $(\Delta T_t - \Delta T_{t-1000})/\Delta T_{t-1000}$ 의 값이 처음으로 0.5% 이하로 떨어졌을 때의 시간이다. 이렇게 x, y축이 무차원화 된 그래프는 (1,0), (0,1)을 지나며 무차원 변수에 따라 원점과 가까워지거나 커지도록 식 (4.3)을 이용하여 유리함수 형태로 유도하였다. 침전이 끝나는 시간 t_∞ , 침전이 끝났을 때 온도진폭 DT_∞ 가 결정되면 유리함

수 형태로 curve fitting 하여 분산안정성에 대한 무차원 매개변수 Stability constant (S) 값을 구할 수 있다. 이를 통해 샘플링으로 인한 농도의 오차, 입자크기를 제외하여 정량적으로 분산안정성을 평가할 수 있다. S에 임의의 상수 0.5, 0.125, 0.0003125를 넣어 Fig. 5-5 (a) 에 표시하였다. S값이 높을수록 분산안정성이 높다는 것을 의미하며, S값이 낮을수록 분산안정성이 낮다는 것을 의미한다.

Fig. 5-6은 Fig. 5-3 (b)을 무차원화 하여 S값을 표시한 그래프이다. 그래프를 보면 분산 시간이 늘어남에 따라 S값이 상승하다 0.081 ~ 0.085에서 더 이상 상승하지 않는다. 이를 통해 Al₂O₃ 0.2 vol. % 200 nm 나노유체는 120 min 정도 분산하는 것이 최소한의 분산안정성을 확보하는 것으로 판단된다. 이를 통해 숫자 하나만 가지고 분산 시간에 따라 분산안정성을 평가할 수 있다. 실험의 결과를 S로 나타냄으로써 분산 방법, 농도, 분산 시간도 비교할 수 있다.

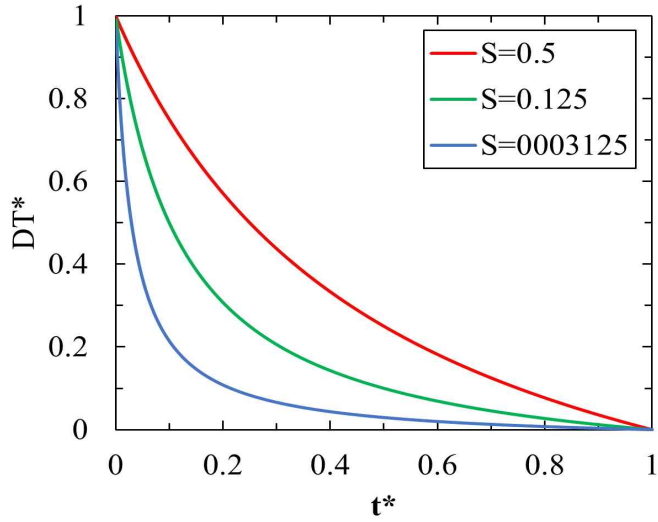


(a)

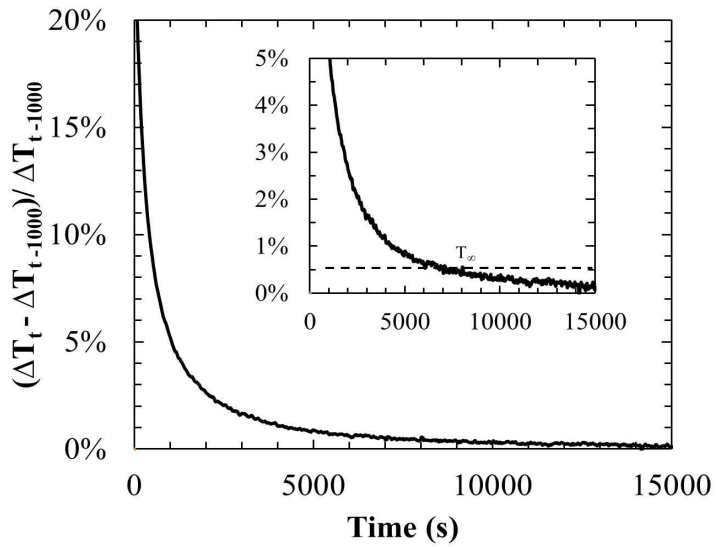


(b)

Figure 5-4 (a) The graph of non-dimensional thermal amplitude using Equation (4.1) and (b) the graph of non-dimensional thermal amplitude and time using Equation (4.1) and (4.2)



(a)



(b)

Figure 5-5 (a) Graph calculated by substituting any number 0.5, 0.125, 0.000315 using Equation (4.3) (b) The relationship between $(\Delta T_t - \Delta T_{t-1000}) / \Delta T_{t-1000}$ and time

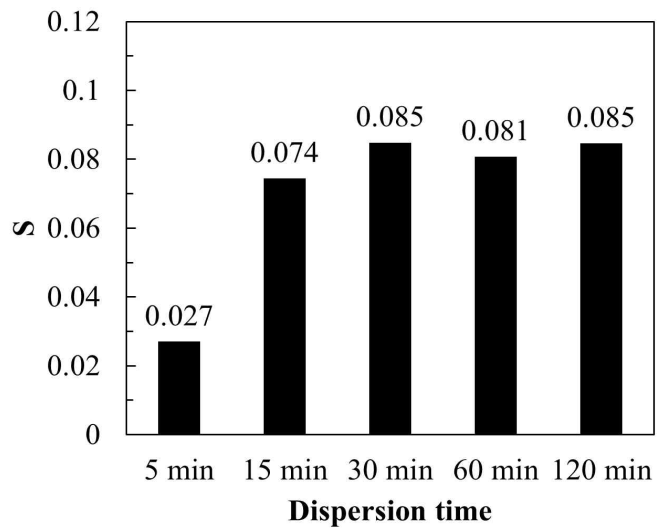


Figure 5-6 Stability constant according to dispersion time

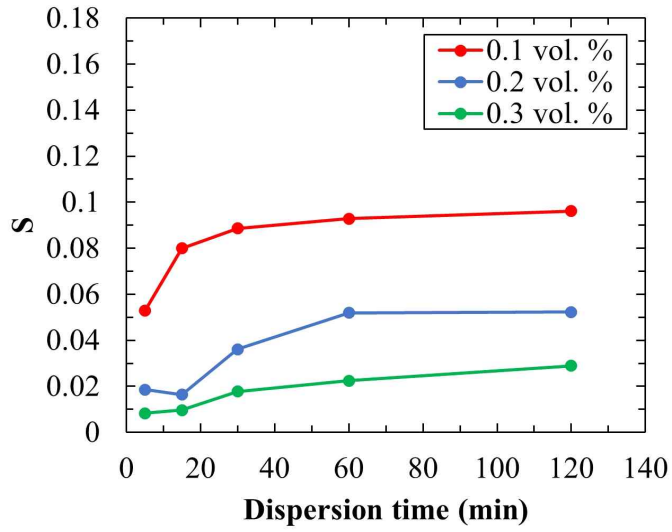
제 5 절 Al_2O_3 나노유체 Stability constant 평가

앞서 언급한 실험방법과 해석방법을 이용하여 분산 방법, 농도, 분산 시간에 따라 제작된 나노유체의 S값을 구하였다. 분산 방법은 교반기를 사용한 방법, 교반기와 초음파 분산기를 모두 사용한 방법으로 분산하였고 농도는 0.1, 0.2, 0.3 vol. %, 분산 시간은 5, 15, 30, 60, 120 min 정하였다. 이렇게 서로 다른 총 30가지의 나노유체를 제작하여 분산안정성 S값을 측정하였다. Fig. 5-7 (a)는 교반기만 사용한 방법으로 제조한 나노유체를 분산 시간에 따른 S값을 농도에 따라 비교하였다. 분산안정성은 농도와 관계없이 분산 시간에 따라 점차 향상되는 것으로 나타났다. 0.1 vol. %의 나노유체는 5 min 분산했을 때보다 120 min 분산했을 때 S값이 향상되었다. 그리고 분산 시간을 60 min 초과하면 분산안정성이 일정 수준에 도달하면 더 이상 향상되지 않는 결과를 보인다. 또한, 농도가 낮을수록 높은 분산안정성을 보이는 것을 확인할 수 있다. 이를 통해 교반기만 사용하여 분산했을 때 나노유체의 농도에 따른 분산안정성을 위한 최소한의 분산 시간을 확인할 수 있다.

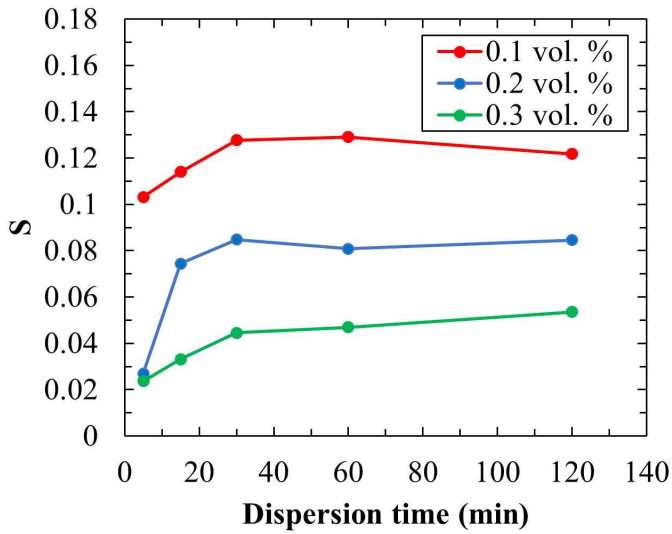
Fig. 5-7 (b)는 교반기와 초음파 분산기를 동시에 사용한 방법으로 제조한 나노유체를 분산 시간에 따른 S값을 농도에 따라 비교하였다. 앞서 말한 교반기만 사용한 방법 결과와 마찬가지로 분산 시간에 따라 분산안정성이 점차 향상되었고 일정 수준에 도달하게 되면 더 이상 증가하지 않았다. 그리고 모든 농도에서 교반기만 사용한 방법보다 같은 분산 시간 대비 더 높은 분산안정성을 가지는 것으로 확인되었다. 그뿐만 아니라, 분산안정성을 위한 최소한의 분산 시간도 짧아지는 것을 알 수 있다. 이를 통해, 사용자가 분산안정성이 높은 나노유체를 제조하고 싶다면 교반기만 사용하는 방법보다 교반기와 초음파 분산기를 동시에 진행하는 쪽이 유리하다.

Fig. 5-7 (c)는 대기시간에 따른 분산안정성 감소를 확인하기 위하여 0.3 vol %농도의 나노유체를 15, 120 min 분산하여 2가지의 나노유체를 0, 2, 4, 8, 16, 24, 48 hr마다 S값을 측정하였다. 시간에 따라서 분산안정성에 차이를 확인하기 위해 처음에는 분산안정성이 뛰어난 나노유체를 만들었다. 분산이 끝난 직후에 나노유체는 0 hr으로 표기하였고, 분산이 끝난 시간부터 2, 4, 8, 16, 24, 48 hr 각각 실험하였다. 두 나노유체 모두 시간이 지남에 따라 분산안정성이 감소하는 경향을 보이지만, 동일한 대기시간에서는 120 min 분산한 나노유체가 분산안정성이 오래 유지되는 것으로 나타났다. 이는 시간이 경과함에 따라 나노입자들이 서로 응집되면서 분산안

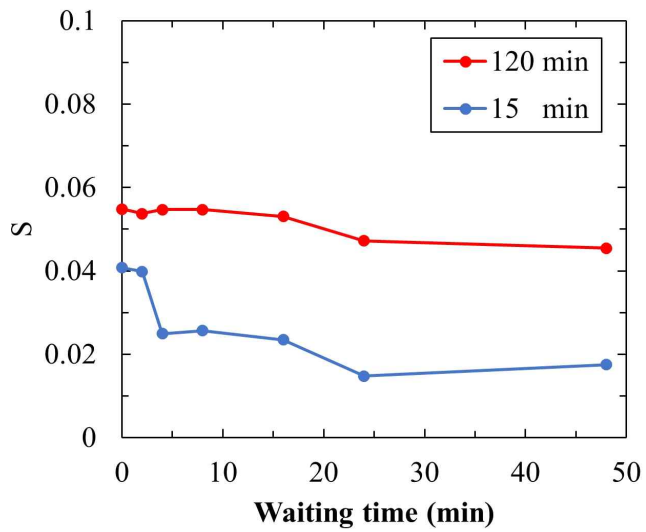
정성을 감소하며 분산안정성이 안 좋을수록 응집하려는 경향이 큰 것으로 사료된다. 또한, 48 hr까지 지속적인 감소하는 것을 보여주기 때문에 이후에도 천천히 감소할 것으로 예상된다. 이를 통해 높은 분산안정성을 가진 나노유체는 분산안정성을 오래 유지할 수 있음을 알 수 있다.



(a)



(b)



(c)

Figure 5-7 (a) Stability constant measurement of nanofluid dispersed using a stirrer. (b) Stability constant measurement graph of nanofluid dispersed using a stirrer and ultrasonic bath. (c) Stability constant according to the waiting time

제 6 절 표준물질 측정

나노유체의 정확한 농도를 알고 있고 나노입자가 똑같은 크기와 완벽한 구형의 형태를 가지고 있으면 동일한 속도로 침전된다. 이때, 온도진폭의 기울기를 통해 입자크기를 측정할 수 있게 된다. 반대로 입자크기를 알면 정확한 농도를 알 수 있다. 하지만 본 논문에서 사용한 파우더 형태의 나노입자는 불규칙한 크기, 걸러지지 않은 큰 입자의 존재, 정확하지 않은 구형의 형태, 줄지 않은 분산안정성 등의 이유로 인해서 입자크기를 측정하기에는 어려움이 있다. 그래서 검증을 위해서 굉장히 균일한 입자크기를 가지며, 완벽에 가까운 구형의 입자인 표준물질로 실험하였다. 표준물질은 주로 측정기기의 교정, 측정 방법의 평가를 위해 사용된다.

표준입자는 silica bead (1000, 500 nm), polystyrene bead 1000 nm, glass bead 2000 nm를 준비하였다. Fig. 5-8 silica bead 1000 nm 0.5, 0.25, 0.1 vol. % 실험값과 이론값이다. 이론값은 식 (2.17)와 Table. 5-1를 사용하여 계산하였다. Fig. 5-8 (a)를 보면 나노유체 이론값과 다르게 같은 농도임에도 불구하고 6000 s에서 온도진폭이 동일한 것으로 계산되었다. Fig. 5-8 (b)의 실험값은 나노유체 이론값 비슷한 6000 s에서 온도진폭이 차이가 있다. 이는 TPD 영역보다 침전된 입자층이 더 두껍기 때문이다. 침전된 입자층의 두께를 시간에 따라서 계산하여 Fig. 5-8 (c) 에 나타냈다. 이론식에서 온도진폭이 일정한 값으로 수렴하는 것이 TPD 영역에 근접하였기 때문으로 사료된다. 이와 관련해서 Wang et al.에서는 TPD 높은 영역에서 이론값과 실험값과 차이가 날 수 있음을 발표한 바 있다 [11]. 또한, 경우에는 그 크기가 온도진폭에 TPD의 5배에 해당하는 영역까지 영향이 있다고만 알려져 있다 [34]. 이러한 실험값과 이론값들의 차이는 TPD 보다 높은 영역일 것으로 예상할 뿐 정확한 원인은 파악되지 않는다. 추후 TPD 보다 높은 영역을 포함한 이론, 침전속도 관측, 공극률 분석을 통하여 이론값과 실험값에 오차를 줄이는 연구를 수행할 계획이다.

Fig. 5-9는 silica bead 500 nm의 이론값과 실험값 그래프이다. silica bead 1000 nm와 입자크기에 따른 침전속도를 비교하기 위해 실험하였다. 하지만 silica 1000 nm와 다르게 500 nm 입자는 6000 s까지 실험하였을 때 온도진폭의 유의미한 변화가 나타나지 않았다. 이러한 현상은 침전 이루어지지 않는다는 의미이며, 침전속도가 스톡스 법칙 이외에 힘이 존재하는 것을 의미한다. 실제로 스톡스 법칙은 입자크기 범위에 제한이 있다. 입자가 약 0.2 mm보다 큰 경우에는 난류가 침전에 영향을 미치며, 입자가 0.0002 mm보다 작은 경우에는 브라운 운동이 침전에 영향을 미치기

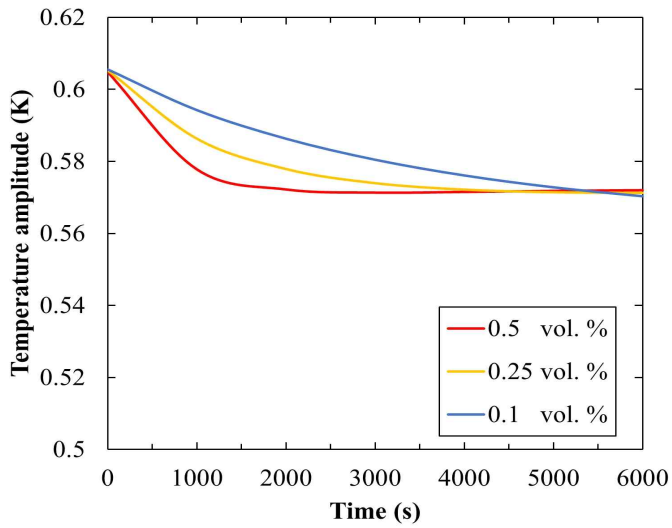
때문이다. 브라운 운동의 영향을 무시할 수 있는 입자의 크기 범위는 $\epsilon \gg \sqrt[3]{3k_B T/4\pi|\rho_p - \rho_f|g}$ 으로 예측할 수 있다. 여기서, k_B 는 볼츠만 상수이다 [35]. silica bead의 경우 $\epsilon \gg 0.59 \text{ um}$ 이기 때문에 500 nm 입자 실험결과에 브라운 운동을 무시할 수 없다. 추후 침전속도에 스톡스 법칙뿐만 아니라 브라운 운동도 포함한 이론을 통하여 이론값과 실험값에 오차를 줄이는 연구를 수행할 계획이다.

Fig. 5-10은 polystyrene bead 1000 nm, glass bead 2000 nm의 실험값 그래프이다. polystyrene bead의 열전도도는 0.11 W/mK으로 바탕유체인 DI-water의 열전도도 0.6 W/mK 보다 열전도도가 낮다. 그러므로 입자가 침전되면 오히려 TPD 내부의 열전도도가 낮아지기 때문에 Fig. 5-10 (a)와 같이 온도진폭은 상승하게 된다. 하지만 온도진폭 실험값과 이론값에 차이가 크다. 그 이유는 polystyrene bead도 $\epsilon \gg 1.2 \text{ um}$ 이기 때문에 브라운 운동을 무시할 수 없기 때문이다. 마찬가지로 추후 연구를 수행할 계획이다.

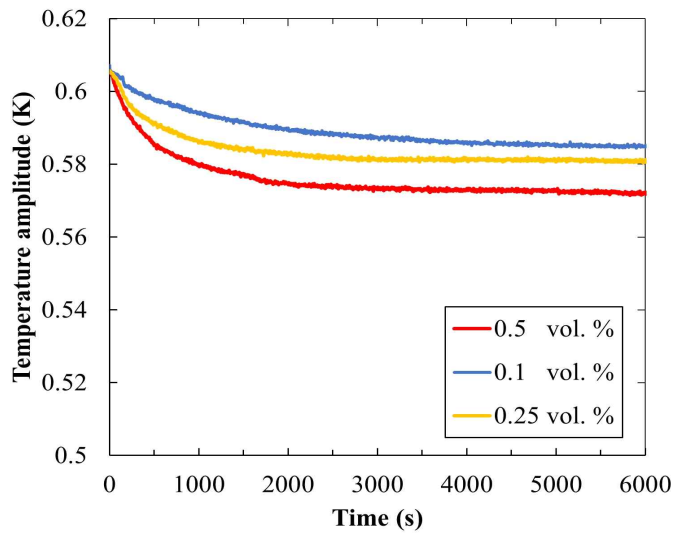
Fig. 5-10 (b)는 파우더 형태의 glass bead 2000 nm를 0.1 vol. % 농도로 10 min 분산하였다. 표준입자이기 때문에 10 min 정도 분산하는 것만으로도 분산안정성을 확보할 것으로 예상하였다. 하지만 나노유체 분산실험과 마찬가지로 온도진폭의 큰 차이를 보이며, 이는 분산안정성 때문에 공극률이 47.7%보다 높은 것으로 사료된다. 추후 나노유체와 마찬가지로 농도와 분산 시간에 따라 실험하여 투명한 시료에 대해서도 입자크기를 추정하는 연구를 수행할 계획이다.

Table 5-1 Thermal properties of silica, polystyrene and glass bead

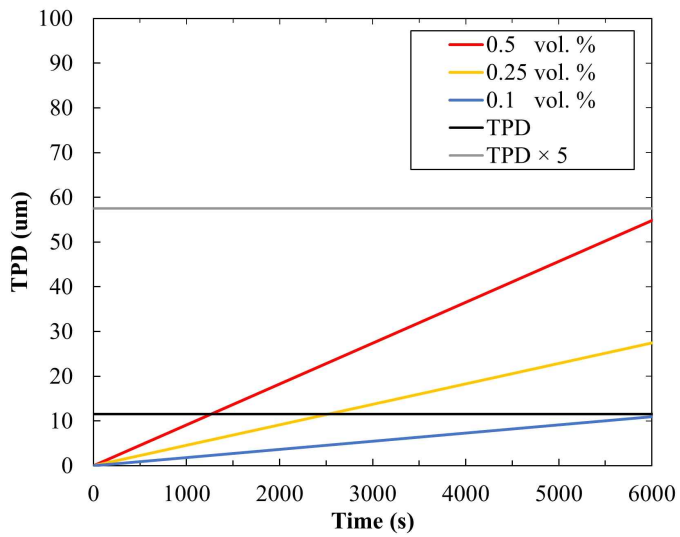
Material	Thermal conductivity (W/mK)	Density (kg/m ³)	Heat capacity (J/kgK)
Silica bead (1000 nm/500 nm)	1.1	2010	700
Polystyrene bead	0.11	1050	1300
Glass bead	1.2	2500	750



(a)

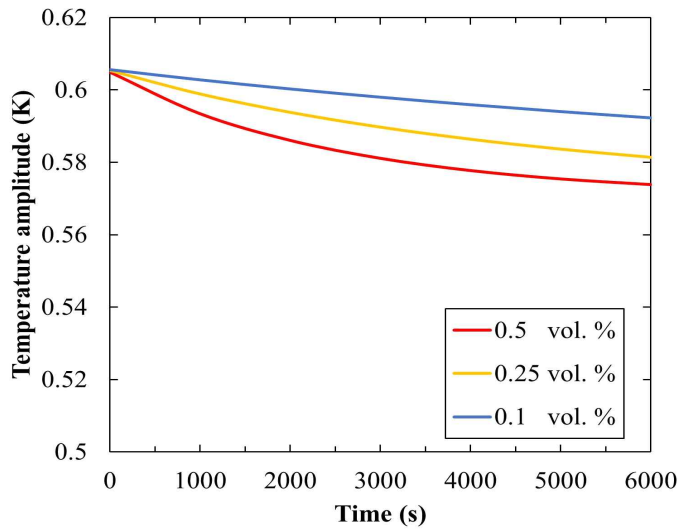


(b)

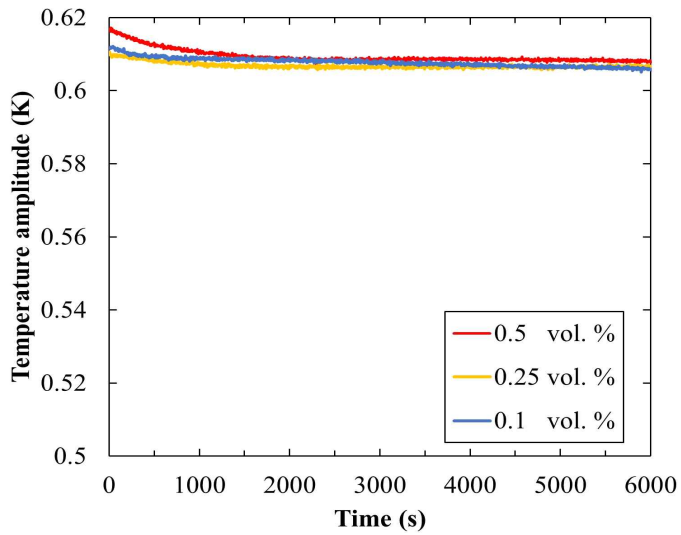


(c)

Figure 5-8 Silica bead 1000 nm concentration 0.5, 0.25, 0.1 vol. % (a) theoretical value, (b) experimental value, (c) relationship between Thickness and Time of Particle Layer

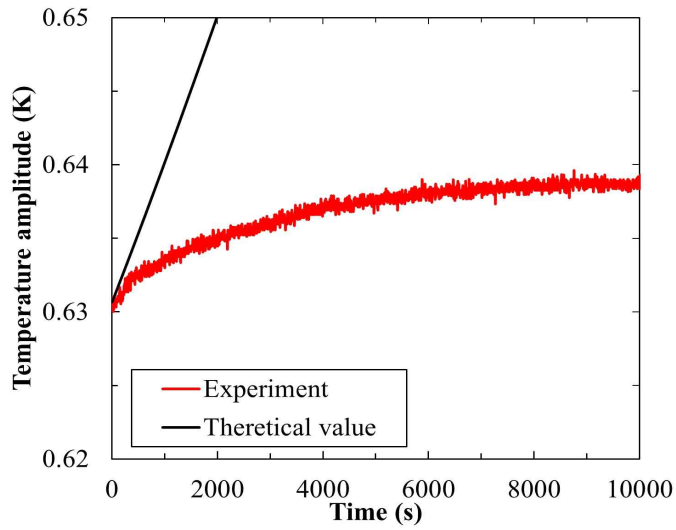


(a)

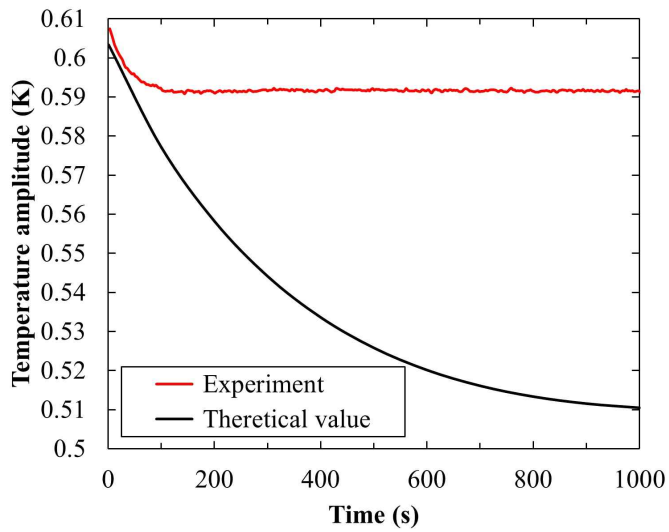


(b)

Figure 5-9 Silica bead 500 nm concentration 0.5, 0.25, 0.1 vol. % (a) theoretical value, (b) experimental value



(a)



(b)

Figure 5-10 (a) Polystyrene bead 1 μm , 1 vol. % experimental value, (b) glass bead 2 μm , 1 vol. % experimental value and theoretical value

제 6 장 결론

본 논문에서는 3ω 방법을 이용한 Al_2O_3 나노유체 분산안정성 평가방법을 제안한다. 제안한 방법으로 나노유체의 농도, 입자크기와 관계없이 분산안정성만 비교할 수 있으며, 지금까지 분산안정성 평가에 어려움이 있던 고농도, 흡광 물질, 투명한 물질에 대해서도 측정이 가능할 것으로 기대된다. 또한, 주파수 바꾸어 실험 범위를 조절하는 추가적인 연구를 통해 입자의 크기, 범위, 실험 시간을 확장하거나 축소할 수 있다.

양방향 3ω 방법 적용을 위한 EXG glass와 polyimide 기판 위에 증착된 미소히터에 대한 열전달 분석을 하였다. Cahill이 제안한 3ω 방법의 기본적인 이론식과 미소히터의 두께, 미소히터와 접촉열저항을 고려한 이론식들을 유도하고 비교하였다. 또한 finite element method를 이용한 2차원 전도열전달 해석결과와 이론식의 차이를 분석하였다. 그리고 EXG glass와 polyimide 기판에 직접 미소히터를 증착하여 기판의 열전도도를 측정하였다. EXG glass의 열전도도는 1.12 W/mK , polyimide의 열전도도는 0.31 W/mK 으로 측정되었다. 또한, 양방향 열전달 3ω 방법을 이용하여 DI-water, ethylene glycol의 열전도도를 측정하였다. DI-water의 열전도도는 0.605 W/mK , ethylene glycol의 열전도도는 0.31 W/mK 으로 측정되었다. 문헌값은 DI-water 0.607 W/mK , ethylene glycol 0.254 W/mK 으로 1% 이내의 오차로 측정할 수 있음을 확인하였다.

실험값과 이론식들과 수치해석 결과를 비교하여 온도진폭만을 사용하여 기판의 열전도도를 측정하는데, 미소히터의 두께, 접촉열저항을 고려하지 않고도 열전도도가 5% 이내의 오차로 측정할 수 있음을 확인하였다. 반면 위상지연의 경우 주파수 구간에 따라 실험값, 이론값들 및 COMSOL 해석값들 간의 차이가 크게 나타났는데, 차이의 원인은 현재로서 파악되지 않는다. 추후 보다 정확한 미소히터의 형상 모델링, Ti/Au 미소히터의 실제적인 열물성 적용, 3차원 전도열전달 해석 등을 통하여 위상지연 실험값과 해석값 사이의 오차를 줄이는 연구를 수행할 계획이다.

3ω 방법을 이용하여 나노유체 밑바닥 부분의 시간에 따른 온도진폭 변화를 측정하여, 분산안정성을 평가하는 방법을 제안하였다. 나노유체 내의 나노입자들이 침전되어 층을 이루며 쌓이는데, 이를 고려한 이론식을 Feldman이 제안한 multilayer solution으로 유도하였다. 그리고 실험을 통해 분산 방법, 농도, 분산 시간에 따른

분산안정성 변화를 확인하였다. 교반기만 사용한 방법의 S값 평균은 0.224이며, 교반기와 초음파 분산기를 동시에 사용한 방법의 S값 평균은 0.383이다. 교반기와 초음파 분산기를 동시에 사용한 방법이 교반기만 이용한 방법보다 S값이 0.159 높기 때문에 교반기와 초음파 분산기를 동시에 사용하여 분산하는 것이 나노유체의 분산안정성을 높이는 방법이다. 그리고 교반기와 초음파 분산기를 동시에 이용하여 120 min 분산하였을 때 0.1, 0.2, 0.3 vol. % 의 S값은 0.122, 0.085, 0.054으로 나타났다. 이를 통해 농도가 높을수록 같은 분산 시간에서 분산안정성이 떨어지는 것으로 확인하였다. 분산 시간을 추가하여도 S값이 높아지지 않는 구간을 확인하였다. 교반기와 초음파 분산기를 동시에 이용하였을 때 최소 0.1, 0.2 vol. % 는 15 min 이상, 0.3 vol. % 는 60 min 이상 분산해야 분산안정성을 확보할 수 있는 것으로 확인하였다. 이는 많은 나노유체의 연구 사이에 분산 시간의 불일치에 도움이 될 것으로 기대된다. 또한, 분산이 끝난 직후로부터 분산안정성이 어떻게 변하는지 확인하기 위해 일정 대기시간을 부여한 후 실험을 진행하였다. 120 min 분산한 나노유체의 S값은 0.056에서 48 hr 지난 후 0.045으로 감소하였고 15 min 분산한 나노유체의 S값은 0.041에서 0.018으로 감소하였다. 15 min 분산한 나노유체는 120 min 분산한 나노유체보다 감소 폭이 더 큰 것으로 나타났다. 두 나노유체 모두 대기시간에 따라서 S값이 감소하는 것으로 확인하였으며, 초기에 S값이 높은 나노유체는 S값을 오래 유지하는 것으로 나타났다.

열전달 성능이 뛰어난 고농도의 나노유체가 개발되면 본 논문에서 제안한 방법으로 분산안정성을 평가할 수 있을 것으로 기대된다. 또한, 개발된 나노유체를 생산할 때 분산안정성을 확보하기 위한 최소한의 분산 시간을 확인할 수 있어서 제작과정에서 불필요한 시간을 줄일 수 있다. 그리고 분산안정성이 얼마나 오래 유지할 수 있는지도 확인하여 나노유체 상용화에 도움이 될 수 있다.

REFERENCES

- [1] A. Jacquot, F. Vollmer, B. Bayer, M. Jaegle, D.G. Ebling, H. Böttner, Thermal conductivity measurements on challenging samples by the 3 omega method, *J. Electron. Mater.* 39 (2010) 1621–1626.
- [2] D.G. Cahill, Thermal conductivity measurement from 30 to 750 K: The 3 ω method, *Rev. Sci. Instrum.* 61 (1990) 802–808.
- [3] S.D. Lubner, J. Choi, G. Wehmeyer, B. Waag, V. Mishra, H. Natesan, J.C. Bischof, C. Dames, Reusable bi-directional 3 ω sensor to measure thermal conductivity of 100- μ m thick biological tissues, *Rev. Sci. Instrum.* 86 (2015) 014905.
- [4] D.W. Oh, A. Jain, J.K. Eaton, K.E. Goodson, J.S. Lee, Thermal conductivity measurement and sedimentation detection of aluminum oxide nanofluids by using the 3 ω method, *Int. J. Heat Fluid Flow.* 29 (2008) 1456–1461.
- [5] D.W. Oh, Investigation of a microheater on a thin PDMS layer as an attachable thermal conductivity sensor, in: *High Temp. - High Press.*, 2016: pp. 425–437.
- [6] L. Tian, Y. Li, R.C. Webb, S. Krishnan, Z. Bian, J. Song, X. Ning, K. Crawford, J. Kurniawan, A. Bonifas, J. Ma, Y. Liu, X. Xie, J. Chen, Y. Liu, Z. Shi, T. Wu, R. Ning, D. Li, S. Sinha, D.G. Cahill, Y. Huang, J.A. Rogers, Flexible and Stretchable 3 ω Sensors for Thermal Characterization of Human Skin, *Adv. Funct. Mater.* (2017).
- [7] S.U.S. Choi, J.A. Eastman, Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles, Argonne National Lab.(ANL), Argonne, IL (United States), 1995.
- [8] R.M. Sarviya, V. Fuskele, Review on thermal conductivity of nanofluids, *Mater. Today Proc.* 4 (2017) 4022–4031.

- [9] J. Buongiorno, D.C. Venerus, N. Prabhat, T. McKrell, J. Townsend, R. Christianson, Y. V Tolmachev, P. Keblinski, L. Hu, J.L. Alvarado, A benchmark study on the thermal conductivity of nanofluids, *J. Appl. Phys.* 106 (2009) 94312.
- [10] X.-Q. Wang, A.S. Mujumdar, Heat transfer characteristics of nanofluids: a review, *Int. J. Therm. Sci.* 46 (2007) 1–19.
- [11] H. Zhu, C. Zhang, Y. Tang, J. Wang, B. Ren, Y. Yin, Preparation and thermal conductivity of suspensions of graphite nanoparticles, *Carbon N. Y.* 45 (2007) 226–228.
- [12] M.L. Bauer, P.M. Norris, General bidirectional thermal characterization via the 3ω technique General bidirectional thermal characterization via the 3ω technique, *Rev. Sci. Instrum.* 85 (2014).
- [13] E. Yusibani, P.L. Woodfield, M. Fujii, K. Shinzato, X. Zhang, Y. Takata, Application of the three-omega method to measurement of thermal conductivity and thermal diffusivity of hydrogen gas, *Int. J. Thermophys.* 30 (2009) 397–415.
- [14] K. Lee, Y. Hwang, S. Cheong, L. Kwon, S. Kim, J. Lee, Performance evaluation of nano-lubricants of fullerene nanoparticles in refrigeration mineral oil, *Curr. Appl. Phys.* 9 (2009) e128–e131.
- [15] D. Lee, J.-W. Kim, B.G. Kim, A new parameter to control heat transport in nanofluids: surface charge state of the particle in suspension, *J. Phys. Chem. B.* 110 (2006) 4323–4328.
- [16] P. Vadasz, Heat conduction in nanofluid suspensions, (2006).
- [17] D. Wu, H. Zhu, L. Wang, L. Liu, Critical issues in nanofluids preparation, characterization and thermal conductivity, *Curr. Nanosci.* 5 (2009) 103–112.

- [18] K.S. Hong, T.-K. Hong, H.-S. Yang, Thermal conductivity of Fe nanofluids depending on the cluster size of nanoparticles, *Appl. Phys. Lett.* 88 (2006) 31901.
- [19] L. Jiang, L. Gao, J. Sun, Production of aqueous colloidal dispersions of carbon nanotubes, *J. Colloid Interface Sci.* 260 (2003) 89–94.
- [20] M.-S. Liu, M.C.-C. Lin, C.Y. Tsai, C.-C. Wang, Enhancement of thermal conductivity with Cu for nanofluids using chemical reduction method, *Int. J. Heat Mass Transf.* 49 (2006) 3028–3033.
- [21] H.S. Kim, W.J. Ko, D.W. Oh, Analysis of thickness and interfacial thermal resistance of Au microheater on glass or polyimide substrate. *High Temperatures-High Pressures* 50 (2021) 295-309.
- [22] M. Abramowitz, I.A. Stegun, D. Miller, *Handbook of Mathematical Functions With Formulas, Graphs and Mathematical Tables* (National Bureau of Standards Applied Mathematics Series No. 55), J. Appl. Mech. (1965).
- [23] B.K. Park, J. Park, D. Kim, Note: Three-omega method to measure thermal properties of subnanoliter liquid samples, *Rev. Sci. Instrum.* 81 (2010) 66104.
- [24] A.T. Ramu, J.E. Bowers, Analysis of the “3-Omega” method for substrates and thick films of anisotropic thermal conductivity, *J. Appl. Phys.* (2012).
- [25] C. Dames, MEASURING THE THERMAL CONDUCTIVITY OF THIN FILMS: 3 OMEGA AND RELATED ELECTROTHERMAL METHODS, *Annu. Rev. Heat Transf.* (2013) 7–49.
- [26] J.H. Kim, A. Feldman, D. Novotny, Application of the three omega thermal conductivity measurement method to a film on a substrate of finite thickness, *J. Appl. Phys.* (1999).

- [27] G.G. Stokes, On the effect of the internal friction of fluids on the motion of pendulums, 9 (1851) 8–106.
- [28] V. Sharma, K. Park, M. Srinivasarao, Colloidal dispersion of gold nanorods: Historical background, optical properties, seed-mediated synthesis, shape separation and self-assembly, Mater. Sci. Eng. R Reports. 65 (2009) 1–38.
- [29] F. Yu, Y. Chen, X. Liang, J. Xu, C. Lee, Q. Liang, P. Tao, T. Deng, Dispersion stability of thermal nanofluids, Prog. Nat. Sci. Mater. Int. 27 (2017) 531–542.
- [30] S.U. Ilyas, R. Pendyala, N. Marneni, Settling characteristics of alumina nanoparticles in ethanol-water mixtures, in: Appl. Mech. Mater., Trans Tech Publ, 2013: pp. 143–148.
- [31] S.U. Ilyas, R. Pendyala, N. Marneni, Preparation, sedimentation, and agglomeration of nanofluids, Chem. Eng. Technol. 37 (2014) 2011–2021.
- [32] Y.A. Cengel, A. Ghajar, Heat and mass transfer (a practical approach, SI version), McGraw-670 Hill Educ. 671 (2011) 52.
- [33] A.A. Hawwash, A.K. Abdel-Rahman, S. Ookawara, S.A. Nada, Experimental study of alumina nanofluids effects on thermal performance efficiency of flat plate solar collectors, GSTF J. Eng. Technol. 4 (2016) 123.
- [34] L.N. Acquaroli, 3-omega method for properties of thin film multilayers, arXiv preprint arXiv:1811.00571 (2018) 1-8.
- [35] G. Metcalfe, M.F.M. Speetjens, D.R. Lester, H.J.H. Clercx, Beyond Passive: Chaotic Transport in Stirred Fluids, Advances in Applied Mechanics 45 (2012): 109-188.