

# 응축입자 발생기에서의 입자 발생특성에 관한 실험적 연구

김진호\* (한국과학기술원 대학원)·김상수\*\* (한국과학기술원)

## An Experimental Study on the Characteristics of Generated Particle using Homogeneous Condensation Particle Generator

J.H Kim ( Graduate School, KAIST ), S.S Kim ( KAIST )

**Key Words :** Condensation(응축), Particle Generator (입자 발생기); Evaporation(증발), Formation of Neucleus(응축핵 생성)

### Abstract

Mono-disperse particles generated by a condensation particle generator are widely used to meet the experimental and industrial needs. The characteristics of particles generated by homogeneous nucleation have been studied experimentally using a laminar flow condensation particle generator. Dry nitrogen gas saturated with oleic acid vapor was cooled well below the saturation temperature causing the highly supersaturated vapor to nucleate. The dependence of GSD(Geometric Standard Deviation), GMD(Geometric Mean Diameter), and the mass concentration of particles on the temperature at the evaporator, flow rate and the temperature condition at condenser was studied. The experimental results show that the mass concentration of particles is affected by the radial temperature profile at condenser. Nucleation at the center of the condenser causes the mass concentration of particles to increase. The experimental results also show that the suppression of additional nucleation by a constant temperature condition at the condenser increases the mean diameter of particle.

### 1. 서론

응축 입자 발생기는 액상이나 고체상의 응축물(Condensate Material)을 가열을 통해 기화 시킨 후 단열 팽창이나 전도 냉각 등의 방법을 통한 냉각으로 인한 과포화 상태를 이용하여 입자를 발생시키는 장치이다. 응축 입자 발생기에서의 입자 발생은 크게 분자 클러스터(Molecular Cluster)간의 결합에 의한 응축핵생성(Homogenous Nucleation)과 응축핵(Nucleus)의 성장에 의한 입자 성장 과정으로 나눌 수 있다. 응축 입자 발생기를 통해 발생된 입자들은 단분산도가 우수한 것으로 알려져 있고, 주로 필터의 성능 실험이나 폐에 입자 부착 실험들에 이용되고 있고, 금속 입자의 경우에는 고순도 물질 생산에 이용되고 있다.

최초의 응축현상에 대한 과학적 연구는 19세기 말 단열 팽창을 통해 구름 상자내의 수증기의 성장 과정을 관찰한 C.T.R Wilson에 의해 수행되었고 그 이후로 현재까지 다양한 연구가 수행되고 있다. 이러한 응축 현상을 이용한 응축 입자 발생

기는 단분산 입자의 필요성에 의해 1940년대부터 연구되기 시작했다. 지금까지의 연구를 정리해 보면 La Mer (1950)에 의해 DBP(Dibutyl Phthlate) 0.15 $\mu\text{m}$  정도의 입경을 가지는 단분산 입자의 생성에 관한 연구가 수행되었고, Nicolan 과 Kerker (1972)가 응축 입자발생기 내부에서 입자의 성장 역학을 충돌과 확산 이론으로 해석하였다.

Nguyen(1987)에 의해 Lamer 발생기를 기본으로 한 동종 응축 입자 발생기 및 이종 입자 발생기에서의 응축핵 생성율(Nucleation Rate)과 종자입자(seed particle)의 농도에 따른 발생 입자 특성에 대한 연구가 수행되었고, Japuntich(1990)에 의해 현재까지 제안된 여러 발생기의 관련 실험 결과를 이용하여 단분산도에 관련된 무차원 변수에 관한 연구와 그 결과를 이용하여 스테아릭 산(Stearic Acid) 입자를 Iganox1010을 응축핵(Nuclei)으로 사용한 이종 응축(Heterogeneous Condensation) 입자 발생기를 제작하였다.

본 연구는 동종응축 입자 발생기(Homogeneous Condensation Particle Generator)의 여러 설계 변수들에 대한 실험적 연구를 통해 설계 시 필요한 기본

자료를 제공하는 것을 주 목적으로 하고 있다. 이러한 연구 목적을 달성하기 위하여 증발기에서의 출구 온도, 응축기에서의 온도 및 유속 조건 등 여러 설계변수 조건을 변화시켜가며 발생입자의 특성의 변화를 측정하여 단분산도와 입자의 질량 농도가 높아지는 최적의 설계 조건을 찾아 내어 무차원 변수 등으로 표현되는 일반적인 설계 변수에 대한 최적 조건을 제시하는 것을 목표로 한다.

## 2. 응축 이론식

### 2.1 응축핵 생성율

동질 응축핵형성(Homogeneous Nucleation)이 일어나기 위해서는 먼저 상당히 높은 과포화 상태가 달성되어야 한다. 증기분자 들의 브라운 확산 등의 여러 무작위적인 과정을 통해 생성된 엠브리오(Embryo)들의 결합을 통해 응축핵이 생성되게 된다. 이러한 응축핵의 생성율은 다음과 같은 식에 의해 지배된다.

$$J = \frac{\alpha_c}{\rho} \left( \frac{2N_A M v}{\pi} \right)^{1/2} \left( \frac{p_s}{RT} \right)^2 S \exp\left( \frac{-\Delta G}{kT} \right) \quad (1)$$

(Pruppacher & Klett, 1978)

위 식은 단위시간 단위부피 당 임계 크기(critical size)에 도달하는 분자 클러스터(molecular cluster)의 수를 나타내는 식으로서, 온도가 낮을 수록 그리고 포화비(Saturation Ratio)가 높을수록 더 활발히 입자가 발생 함을 알 수 있다. 일반적으로  $J \geq 1$  의 조건이 자연 응축(Spontaneous Condensation)이 일어날 수 있는 필요 조건으로 알려져 있다.

### 2.2 입자의 성장률

본 연구에서 주로 다룰 영역인 0.5~10 μm의 입경을 가지는 입자의 경우 주로 확산에 의해 입자가 성장하게 된다. 확산에 대한 입자의 성장률을 살펴보면 아래와 같다.

$$\frac{dd_p}{dt} = \frac{4DM}{d_p RT} (p_s - p_i) \quad (2)$$

즉 입자의 입경 성장속도는 온도와 입자의 직경에 반비례함을 알 수 있다.

## 3. 실험장치 및 절차

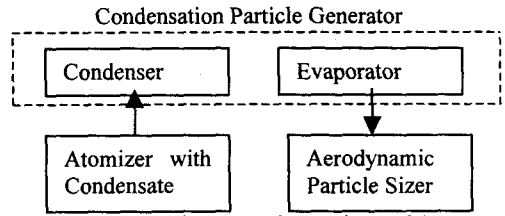


Fig. 1 Schematic Diagrams of Experimental Set up

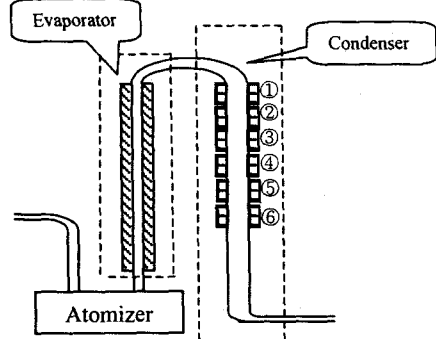


Fig. 2 응축입자발생기 개략도

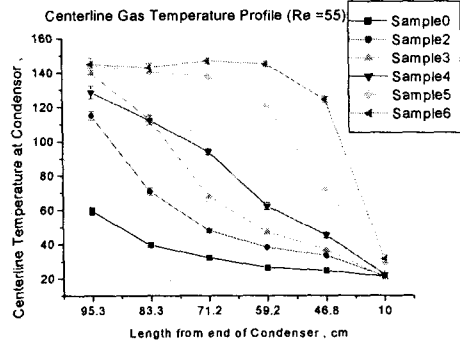


Fig. 3 Centerline Gas Temperature Profile at the Condenser for Sample 0,2~6

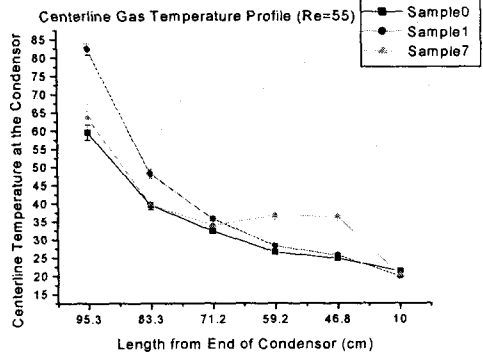


Fig. 4 Centerline Gas Temperature Profile at the Condenser for Sample 0,1,7

전체적인 실험 장치의 구성은 Fig. 1 과 같이 요약 될 수 있다.

응축 입자 발생기 설계 시 기존에 밝혀진 아래와 같은 단분산도를 위한 조건들을 만족시키는 범

위에서 설계하였다.

- 낮은 확산도 ( $Le < 0.2$ )
- 혼합 대류 층류 영역(Mixed convection laminar regime)
- $2R/L < 0.1$

낮은 확산도 조건을 만족시키기 위하여 유기 화합물(Organic Compound) 중 올레익 산(Oleic Acid,  $Le \approx 0.03$ )을 응축물(Condensate Material)로 선택하였고, 실험영역이 혼합 대류 층류 영역(Mixed convection laminar regime)이 될 수 있도록  $Re=100$  정도의 값을 만족 할 수 있도록 응축관(Condenser tube)의 직경을 50mm 로 하고  $D/L > 0.1$  이 되도록 하여 응축관(Condenser Tube)의 전체 길이는 1100mm 로 하였다. 혼합 대류 층류 영역(Mixed Convection Laminar Regime)이란 유동에 의한 강제대류(Forced Convection)와 관 내부에서의 온도 구배에 의한 자연 대류(Natural Convection)가 균형을 이루는 구간을 의미한다.

Fig. 2 는 실험장치의 개략도이다. 본 연구에서는 운반기체(Carrier Gas)로 질소(99.9%)를 사용하였다. 질소가 아토마이저(Atomizer)로 들어가서 가속되면서 압력이 저하되게 되어 대기압 상태인 액체상태의 응축물질이 압력차에 의해 다양한 크기의 액적으로 발생하게 되고 이 액적이 증발관에서 가열을 통해 완전히 기화된 후 응축관에서의 전도냉각에 의한 온도 하강에 의해 과포화 상태에 이르게 되고 과포화 상태에서 응축으로 발생, 성장된 입자를 APS(Aerodynamic Particle Sizer)를 이용하여 발생된 입자의 수농도와 분포를 측정하는 방식으로 실험을 수행하였다. 또 입자 발생기 내부에서 변화하는 온도를 측정하기 위하여 총 8 개의 K-type 열전대를 설치하였다.

실험에서 조절하는 변수는 크게 두 가지이다.  $Re$  를 조절하기 위해 유량을 조절하고 각 유량에 대해 온도조절장치(Temperature Control Unit)를 이용하여 응축관에서의 온도 조건을 조절해 가며 발생 입자 특성을 측정하는 것이다. 입자를 측정하기 전 유량을 3.11pm 으로 조절한 후 약 4 시간 정도 예열을 한 후 발생 입자를 측정하였고, 온도조절장치(Temperature Control Unit)의 가열조건 또는 유량을 바꾸었을 경우 평균 1 시간정도 기다린 후 전체적인 발생기의 온도 분포가 변화가 없어졌을 경우에 대하여 발생 입자를 측정하였다.

본 연구에서는 모두 7 가지의 응축관 조건과 네 가지 유량 조건에 대해 실험을 수행 하였다. 유량 조건은 3.11pm, 2.71pm, 2.21pm, 1.91pm 등 모두 네 가지 경우에 대해 실험을 수행 하였고 이 유량을 응축관(Condenser)에서의 레이놀즈수(Reynolds Number)로 환산하면 38~64 의 범위에 해당되며 이 범위는 혼합 대류 층류 영역(Mixed Convection Laminar Regime)에 포함된다. 응축관의 온도 조건은 Sample 0-7 로 구분한다. Sample 0 은 응축관의

온도조절장치(Temperature Control Unit)의 히터에 전압을 가하지 않은 경우이고 Sample 2 은 온도조절장치(Temperature Control Unit)의 히터 1 에 110V 의 전압을 가한 경우, Sample 3 은 히터 1,2 에 110V 의 전압을 가한 경우, Sample 4 는 히터 1,2,3 에 110V 를 인가한 경우, Sample 5 는 히터 1,2,3,4 에 110V 를 인가한 경우, Sample 6 는 히터 1,2,3,4,5 에 110V 를 가한 경우이다. Sample 1 은 60V 의 전압을 히터 1,3 에 가한 경우이고 Sample 7 은 60V 의 전압을 히터 3,5 에 가한 경우이다.

먼저 Fig. 3 을 참고하여 Sample 0 과 2-6 의 조건을 비교해 보면 0 에서 6 으로 진행 할수록 온도 조절장치(Temperature Control Unit)의 히터에 의한 부가적인 가열이 강해지면서 온도 강하가 느리게 일어남을 알 수 있다. 따라서 Sample 0,2-6 으로 진행 될수록 동질 응축(Homogeneous Condensation)의 시작점이 늦어 지는 현상이 나타남을 알 수 있다.

다음으로 Sample 0,1,7 의 경우는 Fig. 4 에 잘 나타나 있다. Sample 1 은 Sample 0 의 경우에 비해 온도 기울기가 크다는 점을 제외하고는 별 차이가 없는 것을 알 수 있고 Sample 7 의 경우는 35°C 에서 약 30 cm 정도의 온도가 일정한 구간이 나타남을 알 수 있다.

#### 4. 실험 결과 및 분석

응축관 온도 조건 중 Sample 0,2-6 의 결과를 비교해 보면 Sample 0,2-6 에서의 조건은 결국 응축 시작점의 차이가 되게 된다. 일단 온도 조절 장치(Temperature Control Unit) 중 히터에 의해 가열된 되는 곳을 지나고 나면 자연 대류에 의해 급격히 냉각되면서 온도가 냉각되어 응축 시작점까지 온도가 감소하게 된다. 상당한 온도에도 불구하고 급격한 냉각이 일어나는 원인은 낮은 유량과 기상에서의 단위 유량 당 낮은 열용량에 의해 온도에 비해 냉각을 위한 에너지 감소량이 작은 것이 원인이다. Fig. 3 을 보면 Sample 6 이외의 경우에는 온도가 계속 감소하는 경향을 나타내는 것은 응축관의 히터의 위치가 연속적이지 않고 히터간의 약간의 간격이 존재하고 그 간격에서 일어나는 열전달 현상에 의한 것으로 추정된다. 측정된 실험 데이터들을 살펴보면 입자의 수 농도가 증가 할수록 큰 영역의 입자가 많이 발생하여 입자의 기하학적 평균 입경(GMD)이 커지고 입자의 단분산도 즉 GSD 가 증가하는 현상을 보이고 있다. 응축관에서의 온도 조건에 따른 여러 변수의 변화를 살펴 보면 같은 수농도를 기준으로 볼 때 서로 다른 응축관 조건에 대해 GSD 의 응축관 온도 조건에 대한 차이는 거의 존재 하지 않는 것을 Fig. 5, Fig. 6 에서 알 수 있다.

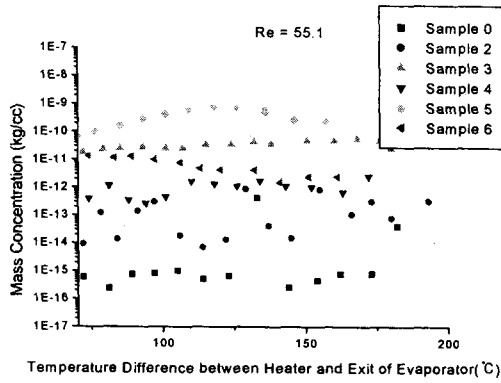


Fig. 5 입자 수 농도에 대한 G.S.D 변화

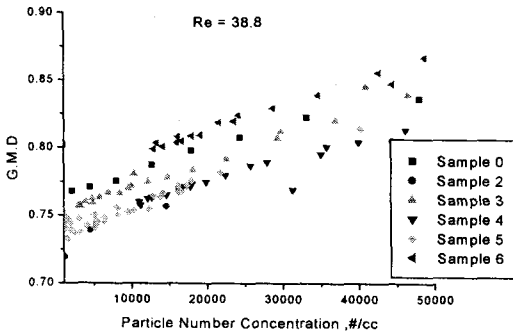


Fig. 6 입자 수 농도에 대한 G.M.D 변화

4.1 발생입자의 질량농도 변화

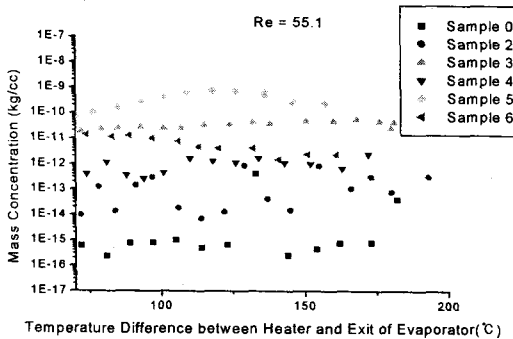


Fig. 7 Re=55.1 인 경우의 질량 농도 변화

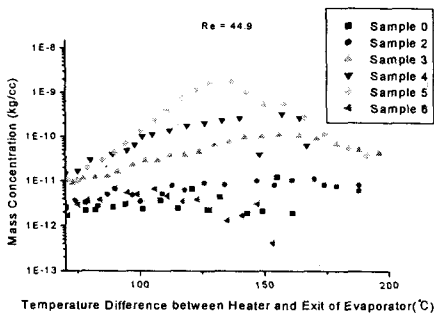


Fig. 8 Re=44.9 인 경우의 질량 농도 변화

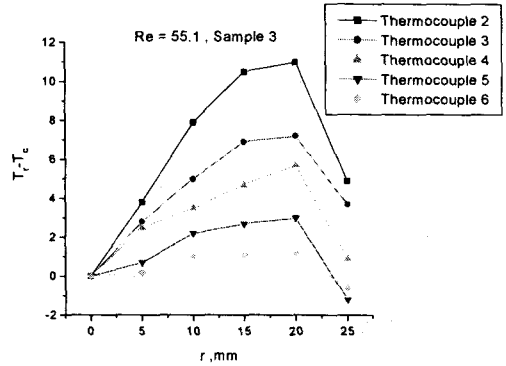


Fig. 9 응축관에서의 반경방향 온도분포

Fig. 7, Fig. 8 의 유량별 질량농도의 변화를 살펴 보면, 먼저 첫 번째 경향으로 Sample 0,2~6 으로 Sample Number 가 커질수록 전체적으로 발생 입자의 질량 농도가 상승하는 경향을 알 수 있다. 이러한 경향이 발생하는 원인은 증발관에서 응축관으로 연결되는 U 자관에서 벽면과 기체와의 온도차에 의한 냉각에 의해 반경 방향 온도 형상(profile)은  $r=0$  에서 최대  $r=R$  에서 최소를 가 되는 형태를 가지게 된다. 반경 방향 온도 형상(profile)이 이러한 형태를 가질 경우 운반 기체(Carrier Gas)상의 올레익산(Oleic Acid) 증기는 열 확산(Thermal Diffusion)에 의해 벽면으로 집중 되게 되고 상당한 벽 손실(Wall Loss)이 발생하게 된다. Sample 2~6 의 경우는 응축관 입구에서부터 부가적인 가열을 가한 경우 이므로 히터(Heater)를 지나면서 반경 방향 온도 형상(profile)이  $r=0$  에서 최소  $r=R$  에서 최대를 가지는 형태로 역전되게 된다. 이러한 형태의 반경 방향 온도 형상(profile)을 가질 경우 위의 경우와는 반대로 열확산(Thermal Diffusion)에 의해 중심 방향으로 올레익 산(Oleic Acid) 증기가 집중 되게 되고 따라서 벽 손실(Wall Loss)이 감소하게 되고 벽 손실(Wall Loss)의 감소로 인해 결국 발생된 입자의 농도는 증가하게 된다.  $Re = 44.9$  인 경우 Sample 5 까지는 증가하는 경향을 보이고 있으나 Sample 6 의 경우에 오히려 감소하는 현상을 보이고 있고,  $Re = 55.1$  인 경우는 Sample 3 의 질량농도가 Sample 4 보다 높게 나타나는 몇 가지 예외가 존재한다. 이러한 현상의 발생원인은 입자 발생시 반경 방향 온도 형태에 의한 것으로 예측된다. 이러한 예외의 경우 중  $Re=55.1$  에 대한 반경 방향 온도 형상(profile)의 측정 결과는 Fig. 9 에 나타나 있다. Fig. 9 에서의 열전대의 위치는 Fig. 3, Fig. 4 에서의 측정점의 위치와 동일하다.

입자 발생 시 응축 핵 생성율(Nucleation Rate) 정도는 식(1)을 보면 결국 일정한 증기 조건 하에 서는 온도의 함수가 되므로 온도가 가장 큰 변수

가 되게 된다. 반경 방향 온도 형상(Profile)이  $r=0$  에서 최소  $r=R$  에서 최대를 가지는 형태일 경우 응축핵 생성(Nucleation)을 통해 발생된 입자가 확산(Diffusion), 열영동(Thermophoresis) 등의 여러 원인에 의해 벽으로 부착될 확률은 극히 줄어들게 되고 오히려 벽 근처의 증기들이 중심방향으로 모이게 된다. Fig. 9를 보면 알 수 있듯이 가열 구간을 지난 후 다음 측정 지점에서는 온도 구배가 반대가 되게 된다. 따라서 발생 입자 농도를 높이기 위해서는 응축핵 생성(Nucleation)이 일어나는 점에서 온도 구배를 적절하게 형성할 수 있도록 부가적인 가열이 필요함을 알 수 있다.

#### 4.2 발생 입자의 평균 입경의 변화

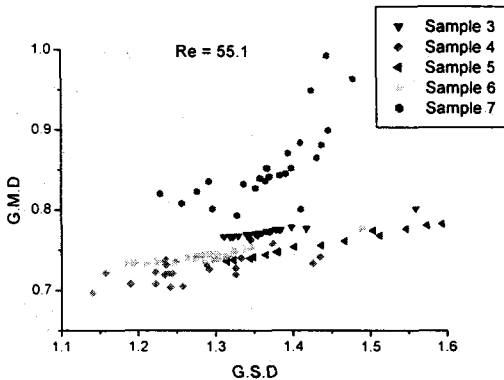


Fig. 10 단분산도에 대한 평균 입경

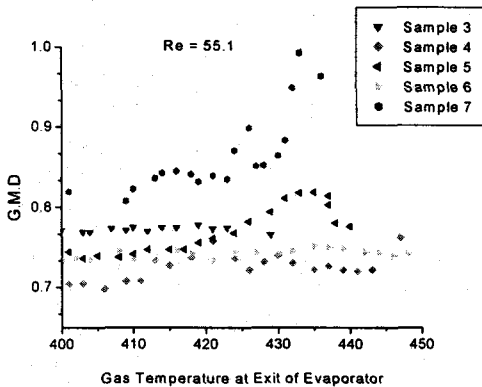


Fig. 11 증발관 출구온도에 대한 평균 입경

Fig. 4를 살펴보면 Sample 7인 경우에는 Sample 0~6의 다른 경우와는 달리 35°C 정도에서 약 30 cm 정도의 온도가 일정한 구간이 있음을 알 수 있다. Fig. 10, Fig. 11에서는 이 경우에 발생한 입자들의 특성을 나타내 주고 있다.

같은 증발관 출구 온도나 같은 GSD를 기준으로 비교해 볼 때 Sample 7의 경우의 발생 입자의 평균 입경이 다른 입자에 비해 커지는 사실에서 응축이 완전히 일어나기 전 일정한 온도가 유지될 경우 발생 입자의 평균 입경이 증가한다는 사실을

확인 할 수 있다. 온도가 일정하게 유지될 때 평균 입경이 상승하는 원인은 초기의 포화도 증가에 의한 동질 응축 핵 생성(Homogeneous Nucleation)을 통한 응축 핵(Nucleus) 발생 이후에도 온도가 계속된 감소로 인해 응축핵(Nucleus)으로의 응축을 통한 증기 농도의 감소에도 불구하고 부분적으로 포화비(Saturation Ratio)가 응축핵생성(Nucleation) 조건을 만족하는 영역이 발생하므로 새로운 응축 핵(Nucleus)이 생성 될 것이다. 응축이 시작된 뒤 계속 온도가 감소하지 않고 같은 온도가 일정하게 유지 될 경우 온도 강하에 의한 포화비(Saturation Ratio)의 증가로 인한 추가적인 응축 핵 생성(Nucleation)이 억제 되어 전체적으로 발생된 응축 핵 생성(Nucleus) 수의 감소로 인해 응축 핵 생성(Nucleus) 당 응축되는 증기의 양의 증가하게 되어 평균 입경의 상승이 일어난 것으로 추정된다. 연속적으로 추가적인 응축 핵 생성(Nucleation)이 일어나도 입자의 입경별 단분산도가 크게 감소하지 않는 원인은 식 (2)를 통해 알 수 있다. 입자의 크기가 작을수록 성장속도가 더 빨라지기 때문에 이미 발생한 입자는 거의 성장하지 않고 새롭게 발생한 입자들이 더 빨리 성장하여 결국 응축관을 완전히 지난 후의 입경은 큰 차이를 보이지 않게 된다.

#### 5. 결론

1) 응축관에서의 입자 발생 시 응축관에서의 부가적인 가열을 통한 반경 방향 온도 형상(Profile)의 변화를 이용해  $r=0$  근처로의 증기 농도를 상승 시킬 경우 발생 입자 농도가 증가하는 효과를 얻을 수 있다.

2) 응축관에서의 입자 발생시 같은 증기 농도에서의 입자 농도는 입자 발생시의 응축관에서의 반경방향 온도 형상(Profile)에 의해 크게 영향 받으며 온도 형상(Profile)이  $r=0$  근처에서 최소인 경우가  $r=R$  인 경우에 최소인 경우에 비해 응축 핵 생성(Nucleation)의 시작점이 관 중심으로 이동한 것에 따른 벽 감소(Wall Loss)의 급격한 감소로 인해 입자 농도가 크게 증가하는 현상을 확인 할 수 있었다.

3) 응축관에서 입자 성장시 그 온도를 일정하게 유지 시켜줄 경우 동질 응축 핵 생성(Homogeneous Nucleation)의 억제를 통해 입자의 평균 입경이 상승하는 경향을 확인 할 수 있었다.

#### 참고문헌

[1] S.K. Friedlander. (1977) *Smoke, Dust And Haze*. John Wiley & Sons, U.S.A.

[2] Parker C. Reist. (1993) *Aerosol Science &*

Technology. McGraw-Hill, U.S.A.

[3] Andrew J. Pesthy, Richard C. Flagan and John H. Seinfeld. (1982) Theory of Aerosol Formation and Growth in Laminar Flow. *J. Colloid and Interface Science*. Vol. 91, No 2, pp. 525-545.

[4] Hung V. Nguyen, Kikuo Okuyama, Tadaaki Mimura, Yasuo Kousaka, Richard C. Flagan, and John H. Seinfeld. (1986) Homogeneous and Heterogeneous Nucleation in a Laminar Flow Aerosol Generator *J. Colloid and Interface Science*. Vol. 119, No 2, pp. 491-504.

[5] Timo Vesala, Markku Kulmala, Richard Rudolf, Aron Vrtala and Paul E. Wagner. (1997) Models for Condensational Growth and Evaporation of Binary Aerosol Particles. *J. Aerosol Science*. Vol. 28, No 4, pp. 565-598.

[6] R.S. Bowles, J.J. Kolstad, J.M. Calo and R.P. Andres. (1981) Generation of Molecular Clusters of Controlled Size. *Surface Science*, Vol. 106, pp. 117-124.

[7] E.R. Buckle, and K.J.A. Mawella. (1985) Condensation and morphology of magnesium particles in vapor plumes. *J. Materials Science*. Vol. 20, pp. 2647-2652.

[8] G. Nicolaon, D.D. Cooke, M. Kerker, and E. Matijevic. (1970) A New Liquid Aerosol Generator. *J. Colloid and Interface Science*. Vol. 34, No 4, pp. 534-544.

[9] Springer, G.S. (1978) in "Advances in Heat Transfer" (T. F. Irvine and J. P. Harnett, Eds.), Vol. 14, pp. 281-346. Academic Press, New York.

[10] D.A. Japuntich, J.I.T. Stenhouse, and B.Y.H. Liu. (1990) Conditions for Monodispersity of Heterogeneous Condensation Aerosol Using Dimensionless Groups. *J. Colloid and Interface Science*. Vol. 136, No 2, pp. 393-400.

[11] D.A. Japuntich, J.I.T. Stenhouse, and B.Y.H. Liu. (1992) An Aerosol Generator for High Concentrations of 0.5-5  $\mu\text{m}$  Solid Particles of Practical Monodispersity. *Aerosol Science Technology*. Vol. 16, pp. 246-254.