

# Differential Mobility Analyzer(DMA)와 Condensation Nuclei Counter(CNC)를 이용한 입자크기 분포 측정에서 샘플링 튜브와 CNC에서의 혼합 효과가 입자 크기 분포 측정에 미치는 영향에 관한 연구

이 윤 수\*    안 강 호\*\*

**Study on the Contribution of Mixing Effects in Sampling Tube and Condensation Nuclei Counter(CNC) to the measurement of size distribution obtained using Differential Mobility Analyzer and CNC.**

YounSoo Lee, KangHo Ahn

**Key words** : Differential Mobility Analyzer(단분산 초미세입자 분리기), Condensation Nuclei Counter(응축 입자 계수기), Particle Size Distribution(입자 크기 분포), Scanning Mobility Particle Sizer(입자 크기분포 측정기), Mixing Effect(혼합 효과), Accelerated Measurement(가속화된 측정)

### Abstract

The time to measure the size distribution using Condensation Nuclei Counter(CNC) and Differential Mobility Analyzer(DMA) can be shortened by classifying particles ramping the DMA voltage exponentially and continuously. In measurement, particles sampled at different time are mixed together going through sampling tube and CNC. Because the size distribution is inversed by using detector responses to sampling time intervals in this accelerated method, the mixing effects give inversion errors to the size distribution. The mixing effects can be considered by applying the transfer function with mixing effects to the data inversion. The inversion considering this effects gives birth to the size distribution shifted to the opposite direction of the size scanning.

#### 기호 설명

$E$  : DMA실린더 내의 전기장  
 $Z_p$  : 입자의 전기적 유동성  
 $t_f$  : 입자의 DMA내 체류 시간  
 $t_m$  : 입자가 DMA에서 샘플링된 시간  
 $t_c$  : 한 채널의 계수시간  
 $S(t)$  : 시간  $t$ 에서의 detector의 응답  
 $s(D_p, n)$  :  $n$ 개의 전하로 하전된 지름이  $D_p$ 인 입자 한 개의 측정기내의 신호

$\phi(D_p, n)$  : 지름이  $D_p$ 인 입자 중  $n$ 개의 전하를 갖는 입자의 비율  
 $\Omega(Z_p, t)$  : 전기적 유동성이  $Z_p$  인 입자의 시간  $t$ 에서의 전달율  
 $\epsilon$  : 계수기의 응답 오차

### 1. 서 론

나노미터 크기의 구조를 갖는 물질은 매우 뛰어난 기계적, 광학적, 전자기적인 성질을 지니며 반도체 공정, 고용량 컴퓨터 하드디스크 제조 그리고 작업장 환경개선 등을 위해서는 나노미터 크기의 입자를 제어해야만 하므로 입자의 크기분포 측정은 입자의 제조나 제어의 모니터링 수단

\* 한양대학교 대학원 기계공학과

\*\* 한양대학교 기계공학과

으로 아주 중요하다 할 수 있다. 입자의 크기분포를 측정하는 방법에는 여러 가지가 있으나, 광학적으로 측정이 어려운 크기의 입자는 DMA와 CNC를 이용하는 측정법이 많이 사용되고 있다.

입자분포측정의 관건은 정확성과 신속성이라 할 수 있으며, DMA의 해상도가 아주 뛰어나기 때문에 정확한 분포를 얻는 것은 어느 정도 보장된다고 할 수 있다. 그러므로 DMA와 CNC를 이용한 측정방법에서 가장 중요한 요소는 측정시간이라 할 수 있다. DMA내의 전기장을 불연속적으로 한 채널에 한 단계씩 변화시키면서 측정하는 방법인 DMPS(Differential Mobility Particle Sizer)는 분포를 알 수 있기에 충분한 채널을 구하려면 많은 시간이 소요가 된다. 이러한 단점은 DMA내의 전기장을 시간에 대해 지수적으로 연속적인변화를 시키면서 입자크기분포를 측정하는 Wang 과 Flagan<sup>(1)</sup>이 제안한 방법으로 많이 보완되었다. 하지만 이 측정방법의 경우 동(同)시간에 DMA에서 샘플링된 입자가 CNC까지 이르는 배관에서의 유체의 속도 형태와 CNC 내부에서의 확산효과등에 의해 다른시간에 채취된 입자와 섞이게 되므로 구해지는 입자분포의 정확성에 영향을 미치게 된다. Russell<sup>(2)</sup>등이 제안한 혼합효과를 고려한 전달함수를 사용하면 이러한 혼합효과를 상당히 보완할 수 있다. 본 연구에서는 이러한 혼합효과를 고려한 전달함수를 이용해 입자의 크기분포를 측정하여 TSI사의 SMPS(Scanning Mobility Particle Sizer)를 이용해 측정한 결과와 비교했으며 혼합효과를 고려하지 않은 역산과 비교해서 혼합효과가 역산에 미치는 영향을 알아보았다.

## 2. 이론

### 2.1 DMA내에서의 입자의 운동

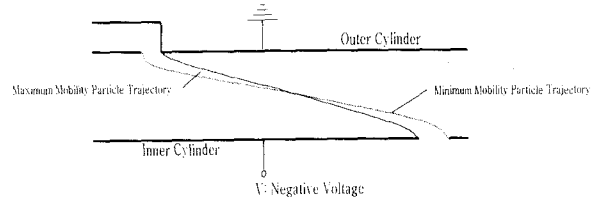
Fig. 1(a) 에서 보는바와 같이 DMA의 내측 원통과 외측원통 사이에 일정한 전기장을 가하면, 채취되는 입자중 최대 전기적 모빌리티와 최소 전기적 모빌리티를 갖는 입자는 위의 그림에서와 같은 경로를 갖는다. 내측 원통에 가해주는 전압에 따른 내측 원통과 외측 원통 사이의 전기장은 다음과 같다.

$$E_r(r) = \frac{V}{r \ln(r_1/r_2)} = E_1 \frac{r_1}{r} \quad (1)$$

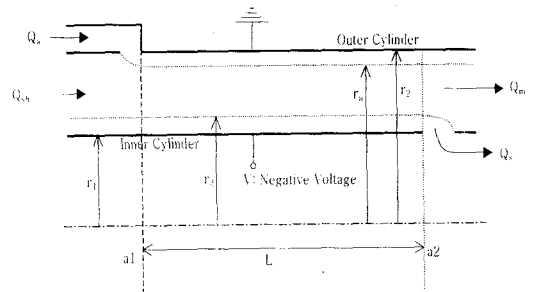
축 방향으로의 움직임은 다음과 같은 식으로 표현 할 수 있다.

$$\begin{aligned} \frac{dr}{dt} &= Z_p E_r(r) = Z_p E_1 \frac{r_1}{r} \\ \therefore r dr &= Z_p E_1 r_1 dt \end{aligned} \quad (2)$$

Fig. 1(b) 에서 단면 a1에서부터 a2까지의 입자



(a) The trajectories of the maximum and the minimum electrical mobility particles



(b) Fluid flows into and out of Differential Mobility Analyzer(DMA) and dimensions of it

Fig. 1 Principles of the operation of Differential Mobility Analyzer

의 움직임을 고려해 식(2)의 축 방향 운동 식을 적분하면 다음과 같은 전기장에 따른 최대, 최소 샘플링 모빌리티를 구할 수 있다.

$$Z_{p, \max} = -\frac{Q_{sh} + Q_s}{2\pi r_1 E_1 L} \quad (3)$$

$$Z_{p, \min} = -\frac{Q_{sh} - Q_s}{2\pi r_1 E_1 L} \quad (4)$$

### 2.2 Differential Mobility Analyzer의 전달함수

Differential Mobility Analyzer의 전달함수를 삼각형으로 가정하여 역산에 적용해도 그 결과는 좀더 사실과적인 모델을 적용한 결과와 거의 일치한다. 삼각형 모양을 가진 전달함수는 여러 사람에게 의해 여러 가지 형태로 제안되었다. 본 연구에서는 Russell<sup>(2)</sup> 등이 제안한 시간의 함수 형태의 전달함수를 사용했다.

### 2.3 Scanning Mobility Particle Sizer(SMPS) DMA(Differential Mobility Analyzer)로 입자

를 분리할 때, 입자가 DMA 내에서 어떤 전기장의 영향을 받았는지에 따라 입자의 샘플링 여부가 결정된다. 전기장의 변화가 입자가 통과하는 동안 일정한 DMPS(Differential Mobility Particle Sizer)에서와는 달리 SMPS에서는 입자가 DMA 내를 통과하는 동안 전기장이 계속 변하기 때문에 입자가 DMA 내를 통과할 때 받는 전기장의 평균 전기장을 고려해 주어야 한다. 그리고 샘플링된 입자가 DMA 내에서 받는 평균 전기장도 시간에 따라 계속 변화하기 때문에 한 채널의 전달함수는 한 채널동안의 전달함수의 시간평균을 그 채널에서의 전달함수로 한다. 아래의 평균전기장과 평균 전달함수의 식이다.

$$\overline{E}_1(t_m) = \frac{1}{t_f} \int_{t_m-t_f}^{t_m} E_1(t) dt \quad (5)$$

$$\overline{\Omega} = \frac{1}{t_c} \int_{t_m}^{t_m+t_c} \Omega(Z_p, t) dt \quad (6)$$

### 2.4 Data Inversion

시간에 따른 CNC에서의 응답은 다음의 식과 같이 표현할 수 있다.

$$S(t) = \int_0^{\infty} n(D_p) \Gamma(D_p, t_m, t_c) dD_p \quad (7)$$

where,

$$\Gamma(D_p, t_m, t_c) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} s(D_p, n) \times \phi(D_p, n) \overline{\Omega}(Z_p(D_p, n), t_m, t_c)$$

CNC의 경우  $s(D_p, n)$  는 1이며,  $\overline{\Omega}$ 는 식(6)에서 정의한 평균 전달함수이다.

$$n(D_p) \approx$$

$$\frac{S_i \frac{dZ_p}{dD_p}}{s(D_p, 1) \phi(D_p, i) \int_{Z_p - \Delta Z_p}^{Z_p + \Delta Z_p} \overline{\Omega}(Z_p, t_m, t_c) dZ_p} \quad (8)$$

위 (8)식은 1개의 기본전하로 하전된 입자만을 고려한 근사식이다. 100nm이하의 입자는 거의 1개 이하의 기본전하를 띠고 있으므로 이 범위에 사용될 수 있다. 다중하전 입자를 고려하기 위해서는 식(7)을 식(9)와 같이 이산화 한 후 최소제거법을 이용하거나 반복법을 이용해 이산화한다.

$$S_i = \sum_{j=1}^L w_j \Gamma_{ij} n_j + \epsilon_i \quad (9)$$

i : sampling channel index(time interval)

j : integration point index(diameter)

본 연구에서는 Twomey의 NLIA(Non-Linear Iterative Algorithm)을 사용했다.

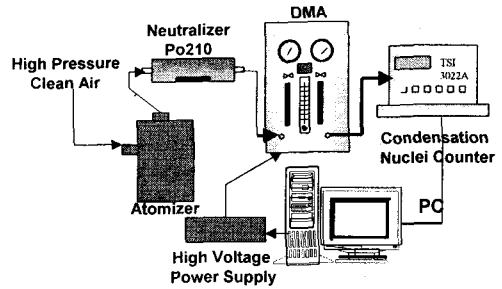


Fig 2. Schematic of Scanning Mobility Particle Sizer

### 3. 장치 설명

Fig. 2에서 보는바와 같이 분무입자 발생기를 이용해 0.1%의 NaCl 용액을 분무시켜 얻은 입자를 DMA의 입구로 넣어 그 분포를 구했다. DMA에서 채취한 입자는 입자계수기인 CNC에서 측정되고 이를 컴퓨터로 받아들여 데이터를 처리했다. 다분산입자의 유량은 원관과 압력게이지와 밸브를 이용한 충류 흐름 측정기를 이용해 조절했고, 클린에어는 Dwyer의 유량계를 이용해 조절했다. Spellman사의 모델명 CZE1000R인 고전압발생기를 사용했고 이를 16비트 해상도의 Voltage Output Card를 이용해 컴퓨터로 제어했다. DMA는 안강호<sup>(3)</sup> 등이 설계 제작한 것을 사용했으며, CNC는 TSI사의 3022A를 사용했고, SMPS Firmware를 이용해 0.1초 간격으로 입자계수 데이터를 받아들였다.

### 4. 결과 및 고찰

#### 4.1 혼합효과에 의한 전달함수의 변화

Russell<sup>(2)</sup> 등이 제안한 식을 이용해 혼합효과 크기에 따른 채널의 전달함수의 변화를 구해 Fig. 3에 나타내었다. 결과는 채널 시간간격을 1초로 했을 때이며 혼합효과가 고려되지 않은 채널 전달함수는 수치적인 적분에 의해 구했다. 혼합효과가 작아질수록 수치적으로 구해진 값에 접근하고 있으므로 전달함수가 타당함을 알 수 있다.

#### 4.2 DMA와 증화기에 의한 커널

Fig. 4과 Fig. 5는 각각 DMA 내에서 연속적인 전기장의 변화가 있기 전의 전기장의 영향을 받은 입자와 변화가 있기 전의 영향과 연속적으로 변하는 전기장의 영향을 동시에 받은 입자가 혼합효과에 의해 채널의 응답으로 나타나는 것을 보여준다. 혼합효과를 고려하지 않는다면 이런

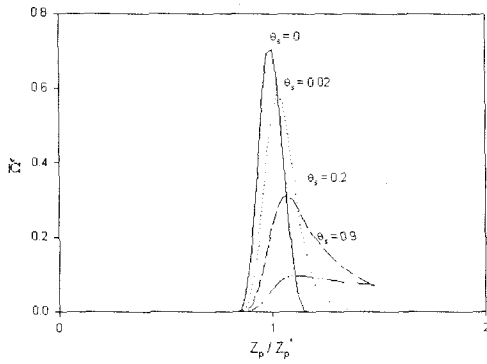


Fig. 3 Normalized channel transfer function  
(time span of channel : 1 s)

입자들은 첫 번째 채널 이전에 CNC에서 계수 되어야 하지만 혼합효과의 영향으로 채널의 응답에 영향을 미치게 된다. 첫 번째 채널 이전에 채취된 입자에 의한 영향은 시간이 흐를수록 지수적으로 감소하는 것을 볼 수 있다. 이 결과는 Sheath air의 유량을 10 lpm, 다분산 입자의 유량을 1 lpm, 채취 유량을 1 lpm으로 했을 때의 결과이다. 입자의 혼합효과의 정도를 나타내는 시간상수  $\tau_s$ 는 2초로 가정했으며, 입자가 DMA 내를 이동하는 시간인  $t_f$ 는 2.1초이다. 각 채널의 시간 간격은 0.5초로 했고 내측 원통의 전압을 변화시키기 시작해서  $t_f$ 가 지난 이후부터 첫 번째 채널의 응답을 받기 시작했다.

Russell등이 제안한 혼합효과를 고려한식과 첫 번째 채널 이전에 채집된 입자의 효과를 고려한 식을 더해 각 DMA의 채널에 대한 평균 전달함수를 구하고 여기에 각 입자 크기에 대한 하전 비율을 곱하면 Fig. 6 와 같은 커널(kernel)을 구할 수 있다. 스캐닝의 방향은 작은 입자 쪽에서 큰 입자 쪽이며 이

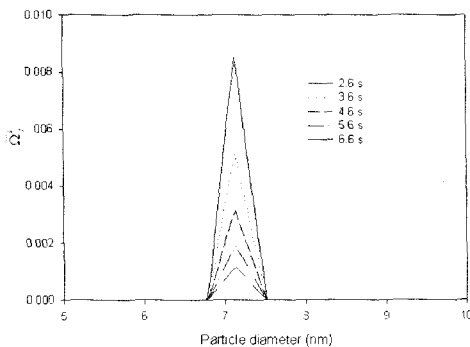


Fig. 4 Effects of Particles sampled before voltage ramp due to mixing effects at time t ( $V_0 = 10V$ ,  $\tau_s=2$ )

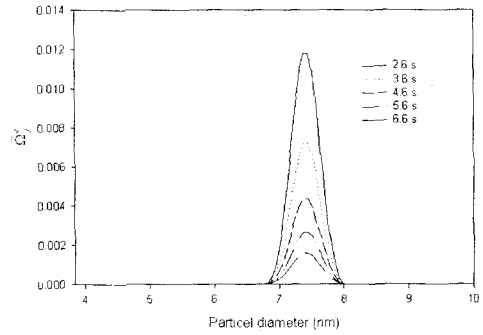


Fig. 5 Effects of particles sampled after voltage ramp and before the first channel due to mixing effect at time t ( $V_0 = -10V$ ,  $V_{final} = -10kV$ , up scan, scan time : 60 s,  $Q_{sh} = 10$  lpm,  $Q_s = 1$  lpm,  $\tau_s = 2$ )

방향과 반대방향으로 입자의 꼬리가 생기는 것을 볼 수 있다. 하전된 입자의 전체 입자에 대한 비율은 Wiedensholer<sup>(4)</sup>가 제안한 식을 사용했고 3개 이상의 기본전하를 띤 입자에 대해서는 Gunn이 제안한 식을 사용했다.

#### 4.3 샘플링 입자의 응답 지연시간 측정

입자가 DMA에서 분류되어 샘플링 된 후 CNC에서 계수하기까지는 약간의 시간 지연이 있다. 이 시간을 정확하게 알아야만 CNC에서 계수된 입자가 정확히 언제 DMA에서 샘플링 되었는지 알 수 있다. Fig. 7 은 샘플링 튜브의 길에 따른 지연시간을 알아보기 위해 DMA의 전압을 10V

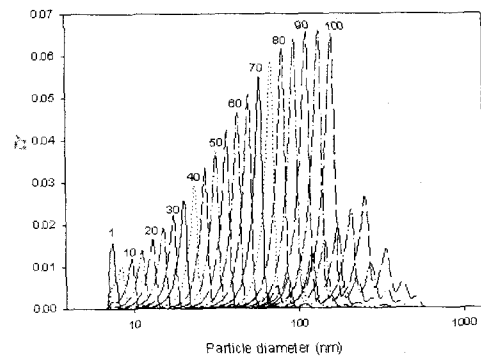


Fig. 6 Kernel in up-scanning ( $Q_{sh}=10$  lpm,  $Q_s=1$  lpm,  $V_0=10V$ ,  $V_{final}=10kV$ , scan time : 60 s, time span of one channel : 0.5 s)

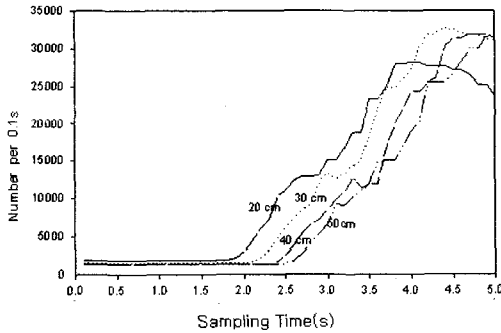


Fig. 7 Responses according to sampling tube length when DMA voltage is changed abruptly from 10V to 2kV. (0.1% NaCl,  $Q_{\text{sampling}} = 0.3 \text{ lpm}$ )

에서 2000V로 갑자기 변화시킨 후 CNC의 응답을 구한 것이다. 지연시간이 튜브의 길이에 따라 증가하는 것은 매우 당연하지만 DMA의 샘플링 슬릿과 CNC의 레이저 계측기 사이에는 사용자가 알 수 없는 공간이 존재하므로 그 도달시간은 쉽게 예측할 수 없기 때문에 위와 같이 실험적으로 구해져야만 한다. 여기서 샘플링 튜브의 길이는 DMA의 출구의 길이와 CNC의 입구의 길이를 제외한 길이이며 튜브의 지름은 약 6.5 mm 이다. 측정에 사용된 입자는 0.1%의 NaCl 용액을 분무 입자 계수기를 이용해 분무시켜 얻은 것이다. 이때의 샘플링 유량은 0.3 lpm 이다.

#### 4.4 혼합 효과의 측정

DMA의 전압을 갑자기 변화시킬 때 혼합효과가 없다면 응답지연시간과 DMA내의 잔류시간 (flying time) 후에 CNC에서는 정확히 변화된 전압에 대한 입자만을 계수 해야 한다. 즉 입자의 시간당 입자의 계수 개수가 일정하게 되어야 한다. 하지만 Fig. 8의 결과를 보면 그렇지 않다는 것을 알 수 있다. 이것이 바로 혼합효과 때문에 발생하는 현상이다. 그러므로 입자의 시간당 계수 개수가 일정하게 되는 시간까지 혼합효과가 나타난다고 할 수 있다. DMA의 전압을 10kV에서 0V로 갑자기 변화시켰을 때의 CNC의 응답을 나타낸 것이다. DMA 전압의 변화 폭을 크게 한 것은 입자가 거의 DMA 잔류시간이 끝날 쯤에 포집되게 하여 혼합효과를 극대화시키기 위해서 이다.

#### 4.5 입자 분포의 측정

NLIA를 검토하기 위해 가상의 데이터를 적용

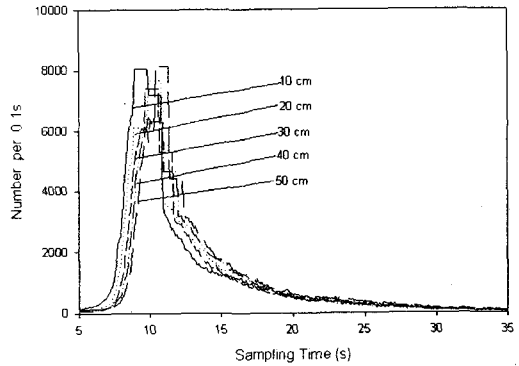


Fig. 8 Responses according to sampling tube length when changing DMA Voltage from 10kV to 0V at  $t=0$  (0.1% NaCl,  $Q_{\text{sampling}} = 0.3 \text{ lpm}$ )

하여 역산을 해 보았다. 약간의 오차는 있지만 역산한 결과가 가정한 분포와 잘 일치함을 알 수 있었다.

위의 실험에서 구해진 응답 지연시간과 혼합효과를 이용해 식(9)에서 다른 커널 행렬  $[F_{ij}]$ 를 구한다. 이때 적분의 하한과 상한은 Hagen<sup>(5)</sup> 등이 제안한 범위를 사용했다. 또한 DMA의 전압을 시간에 대해 지수적으로 변화시키면서 CNC 응답을 구한다. 이 두 데이터를 이용해 원래의 입자 농도를 역산해 낸다. 실험은 Sheath air 3 lpm, 다분산 입자 유량 0.3 lpm, 채취입자유량 0.3 lpm의 조건에서 10V에서 10kV까지 60초동안 변화시키면서 이루어졌다. Fig. 9는 Twomey의

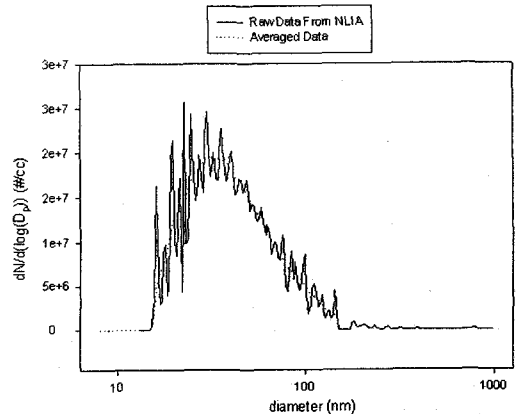


Fig. 9 Size distribution of the particles generated by spraying 0.1% NaCl solution with atomizer obtained by using NLIA

## 5. 결론

CNC에서와 샘플링 튜브에서의 혼합효과가 구해지는 입자의 크기분포에 끼치는 영향을 고려한 결과는 다음과 같다.

- ① CNC에서의 혼합효과가 샘플링 튜브에서의 혼합효과보다 매우 큼을 알 수 있었다.
- ② 갑작스런 DMA전압의 변화로 응답 지연시간과 혼합효과를 측정해서 역산에 적용한 결과 매우 적절한 결과를 얻었다.
- ③ 혼합효과가 커지면 커질수록 구해지는 분포의 중심이 스캐닝의 반대방향으로 더 많이 움직인다.

## 참고문헌

- (1) Shih Chen Wang and Richard Flagan, 1990, Scanning Electrical Mobility Spectrometer Aerosol Sci. and Tech., Vol. 13, pp. 230~240
- (2) Lynn M. Russell, Richard C. Flagan, and John H. Seinfeld, 1995, Asymmetric Instrument Response Resulting from Mixing Effects in Accelerated DMA-CPC Measurement, Aerosol Sci. and Tech., Vol. 23, pp. 491~509
- (3) 안강호, 김효남, 이종호, 배귀남, 1996, Differential Mobility Analyzer(DMA)내의 입자운동 및 특성 분석, 대한기계학회논문집(B) 제 20권 제 6호, pp. 2005~2013
- (4) A. Wiedensohler, 1988, An Approximation of the Bipolar Charge Distribution for the Particles in the Submicron Size Range, J. Aerosol Sci., Vol. 19, No. 3, pp. 387~389
- (5) Donald E. Hagen and Darryl J. Alofs, 1983, Linear Inversion Method to Obtain Aerosol Size Distributions from MeasurSci. and Tech., Vol. 2, 465~475
- (6) Abde Kapadia, 1980, Data Reduction Techniques for Aerosol Size Distribution Measuring Instruments., Ph. D. paper.

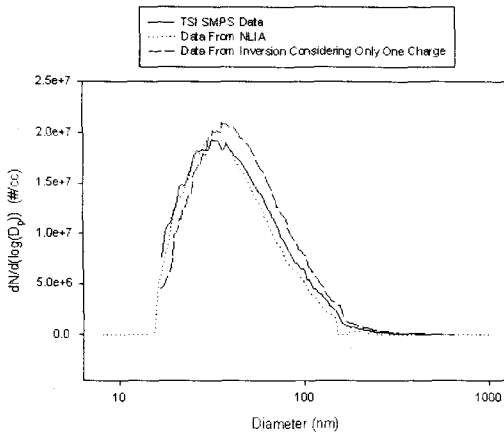


Fig. 10 Size distributions obtained by three different inversion methods.(0.1% NaCl solution)

NLIA(Non Linear Iterative Algorithm)를 이용해 구해진 입자의 분포이다. Abde Kapadia<sup>(6)</sup>는 그의 박사논문에서 Twomey의 비선형 반복법을 이용해 얻어진 해는 실제 해의 주위를 오르내리는 진동하는 근사해 라고 언급하고 있다. Fig. 10는 상용 프로그램인 TSI사의 SMPS를 이용해 구한 입자의 분포와 본 연구에서 구해진 결과 그리고 혼합효과를 고려하지 않은 Wang과 Flagan이 제안한 역산법을 이용한 결과를 비교한 것이다. 역산 결과 두 결과는 거의 일치하는 것을 알 수 있다. 그리고 Wang 과 Flagan<sup>(1)</sup>이 제안한 1개이하의 전하로 하전된 입자만을 고려하고 혼합효과를 고려하지 않은 채널 전달함수를 사용해 구한 입자 분포의 결과보다 왼쪽으로 이동하는 것을 볼 수 있다. Table. 1 에서는 이 세 가지 분포에 대한 기하학적인 입자 평균크기( $D_g$ )와 기하학적인 입자 분산도( $\sigma_g$ )를 나타내었다.

Table. 1 Geometric standard deviation and geometric mean diameter of the three cases plotted in Fig. 10

	$D_g$	$\sigma_g$
NLIA	39.5 nm	1.679
TSI SMPS	40.6 nm	1.734
Wang and Flagan	44.6 nm	1.706