

화염에서 생성된 응집체의 공기역학적 입경에 대한 연구

권문석* · 박형호** · 김상수***

A Study on the Aerodynamic Diameter of Flame-generated Aggregates

Moonseok Kwon, Hyung Ho Park and Sang Soo Kim

Key Words: Aerodynamic Diameter(공기역학적 입경), Stokes' Diameter(Stokes 입경), Equivalent Area Diameter(등가면적입경), Fractal Dimension(프랙탈 차원), Aggregates(응집체)

Abstract

The relation between the aerodynamic diameter and some morphological parameters was studied for flame-generated aggregates.

SiO₂ aggregates were generated from SiCl₄ in premixed methane/air flames. These aggregates were sampled and classified according to their aerodynamic diameter by a cascade impactor; moreover, computer program was developed and tested to find the equivalent area diameter and the fractal dimension of the aggregates. We calculated the parameters from the digitized images of the aggregate TEM micrographs.

The aerodynamic diameters of the sampled aggregates were larger than 0.4 μ m in this experiment. In most cases, fractal dimension of their projection image was very close to 2.0 for these large aggregates. It was found that the equivalent area diameter of these aggregates was approximately three times larger than the Stokes' diameter of them.

기호설명

- A : 사영면적
- C : 밀도자기상관계함수
- d_a : 공기역학적입경
- d_{area} : 면적등가입경
- D_f : 프랙탈 차원
- d_{ij} : 점 i와 점 j 사이의거리
- d_{Stk} : 스톡스 입경
- h : 절단함수
- r : 두 점간의 거리
- R_g : 회전반경
- ρ_b : density of bulk material
- ρ_0 : 단위 밀도, 1g/cm³

1. 서론

액체 에어로졸 입자는 표면장력 효과에 의해 구형을 이루는 경우가 많아 그 형상이 비교적 단순하게 묘사될 수 있는 반면에 대부분의 고체 에어로졸 입자는 단순한 수치로 표현하기 힘든 복잡한 형상을 하고 있다.

이렇게 불규칙하고 다양한 형상을 하고 있는 에어로졸입자의 크기를 나타내기 위해서 다양한 등가입경의 개념이 개발·도입되어 이용되고 있다. 공기역학적 입경(aerodynamic diameter), 스톡스 입경(Stokes' diameter), 전기적 유동도 입경(electrical mobility diameter) 등은 입자의 운동학적 특성과 관련되어 특히 많이 사용되는 개념이며, 이들을 측정할 수 있는 장비도 다양하게 개

* 삼성 SDI M/E 사업부

** 한국과학기술원 대학원 기계공학과

*** 한국과학기술원 기계공학과

발되어 있다.

등가입경이라는 개념적 수치는 입자가 구형인 경우에 한하여 실제적인 크기와 대응되어 왔으므로, 에어로졸 입자의 실제 크기·형상과 이들 등가입경 사이의 관계가 명확하게 표현되지 못하고 있는 실정이다.

등가입경과 실제 입자의 크기 형상 간의 관계를 찾아낼 수 있다면 에어로졸 입자의 운동을 이해하는 데 도움을 줄 수 있는 기초적인 자료가 될 것이며, 많은 측정 장치나 측정방법에서 이용되고 있는 비구형 입자에 대한 가정을 보완해 줄 수 있을 것이다. 또한 시뮬레이션을 통해 생성한 응집체의 운동학적 특성을 곧바로 수치해석에 적용할 수도 있을 것으로 기대된다.

과거에도 입자의 형상과 운동학적 특성의 관계를 밝히려는 연구가 여러 차례 있었다. W. Stober는 스스로 고안한 spiral-disk centrifugal aerosol spectrometer를 이용하여 일정한 크기의 구형입자 수 개로 구성된 응집체를 공기역학적 입경에 따라 분류하였다.⁽¹⁾ 그리고 그 입자에 작용하는 점성력과 그와 동일한 부피의 구형입자에 작용하는 점성력의 비로 정의되는 dynamic shape factor라는 개념을 도입하였다. Forrest와 Witten은 프랙탈 차원을 이용하여 응집체의 형상을 정량화할 방법을 제시하였다.⁽²⁾ Rogak과 Flagan은 시뮬레이션을 통해 생성한 3차원의 응집체와 그것의 사영 영상에 대한 프랙탈 차원을 비교하여 3차원과 2차원 프랙탈 차원 값에 대한 비교 연구를 하였다.⁽³⁾ 이들은 또한 전기적 유동도와 프랙탈 차원 값과의 관련성에 대해서도 연구하였다.⁽⁴⁾

본 연구에서는 면적등가입경의 개념을 도입하였는데 이는 입자의 사영된 영상과 같은 넓이를 가지는 원의 직경으로 사영 면적과의 관계는 다음과 같다.

$$d_{area}^2 = \frac{4A}{\pi} \quad (1)$$

한편 도심(centroid)을 원점으로 하는 2차원 영상에 대한 회전반경(radius of gyration)은

$$R_g^2 = \frac{\int_A (x^2 + y^2) dx dy}{A} \quad (2)$$

으로 정의된다.

또한 하나의 입자에 대해 공기역학적 입경과 스톡스 입경은 다음의 관계를 갖는다.

$$\frac{d_a^2}{d_{Stk}^2} = \frac{\rho_b}{\rho_0} \quad (3)$$

프랙탈 차원을 구하는 방법은 여러 가지가 제시되었는데 밀도자기상관관계(density autocorrelation) 방법은 밀도에 대한 자기상관관계함수 (autocorrelation function)로부터 프랙탈 차원을 구하는 방법으로 여러 알고리즘들 중 가장 참값에 가까운 값을 구하는 방법으로 알려져 있다. 2차원 영상에 대하여 컴퓨터를 이용하여 알고리즘을 구현하기 쉽도록 표현하면,

$$C(r) = \frac{1}{N} \lim_{dr \rightarrow 0} \frac{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \theta(r < d_{ij} < r + dr)}{2\pi r dr} \quad (4)$$

절단함수(cut-off function)를 이용하면 밀도자기상관관계함수와 프랙탈 차원의 관계는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$C(r) \sim r^{D_f - D_E} h\left(\frac{r}{R_g}\right) \quad (5)$$

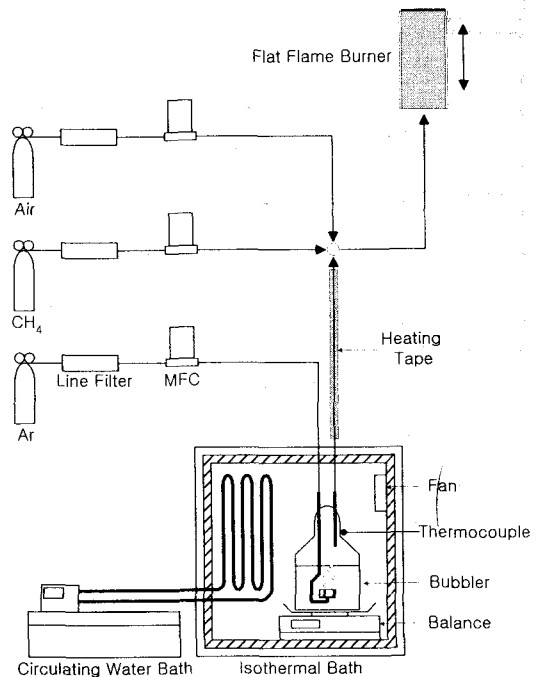


Fig.1 Aerosol reactor.

2. 실험장치와 방법

2.1 실험장치 개요

입자의 형상과 크기를 동시에 관찰할 수 있는 실험방법은 크게 광산란 측정법과 직접 채취를 통해 전자현미경으로 관찰하는 방법이 있는데 이번 연구에서는 개개의 응집체에 대하여 그 크기와 형상을 관찰하기 위하여 직접 채취 방법을 이용하였다. 응집체의 공기역학적 입경을 알기 위해서 다단 관성충돌기를 이용하여 응집체를 각 단의 충돌판에 공기역학적 입경별로 분류하여 포집하고 그 형상을 전자현미경으로 관찰하였다.

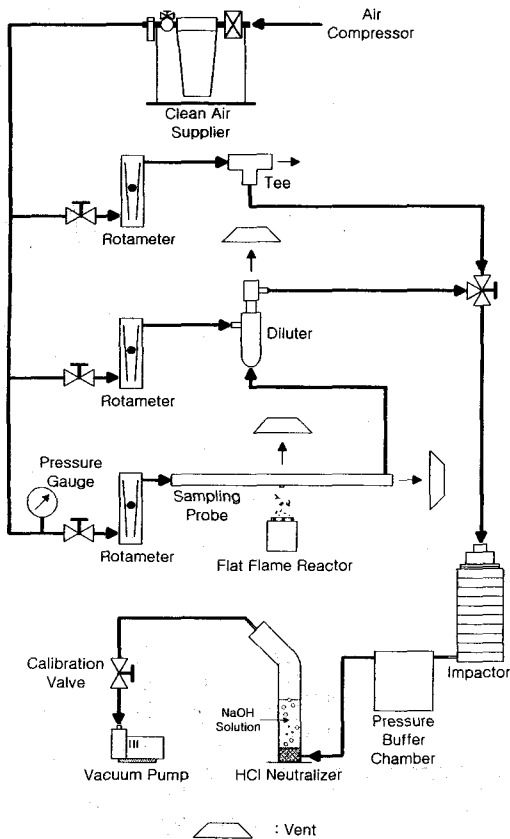


Fig.2 Sampling system.

Table 1. Flow rate conditions

Flowrate condition number	Air (lpm)	CH ₄ (ccm)	Ar (ccm)	SiCl ₄ feeding rate (g/min)
1	9.5	800	0	0
2	9.2	800	20	0.186
3	7.0	800	200	1.024

2.2 입자발생장치

Fig. 1 은 입자발생장치를 나타낸다. 응집체를 생성하는 화염에어로졸 반응기에는 SiCl₄를 전구체 물질로 사용하였다. 그리고 SiCl₄의 공급량을 조절하고 일정하게 유지시키기 위하여 MFC를 이용하여 Ar 유량을 일정하게 하였고, 항온조 내에 Bubbler를 설치하여 온도를 30±0.1℃로 유지시켰다. 각 조건에 따른 전구체 물질의 공급량은 저울로 무게를 측정하여 보정하였다.

반응기는 세라믹 허니콤(ceramic honeycomb)을 이용하여 제작하였고 메탄과 공기를 사용하여 예혼합평판화염 속에서 SiO₂ 응집체가 발생되도록 하였다.

2.3 입자 샘플링 장치

Fig. 2 에는 입자발생장치에서 생성된 응집체를 샘플링하는 장치를 나타내었다. 실험에서 사용한 관성충돌기는 Andersen Instrument의 8단 관성충돌기였는데 일정 크기 이상의 응집체는 거의 생성되지 않았기 때문에 실제 실험에 사용된 단은 3단부터 7단까지의 5단이었다.

공기역학적 입경이 큰 응집체를 생성하기 위하여 Table 1. 에서와 같이 높은 비율로 SiCl₄를 공급해 주었기 때문에 SiO₂ 입자가 고농도로 존재했다. 이러한 높은 농도를 샘플링하는 데는 많은 문제가 있었기에 이를 해결하기 위해 두 차례에 걸쳐 청정공기와 희석시켜 1:600 이하의 비율로 에어로졸의 농도를 낮추어 주었다. 이러한 희석비를 달성하기 위하여 Kasper의 논문⁽⁵⁾에서 제시된 채취탐침(sampling probe)를 개량하여 제작한 장치(Fig. 3)와 진술산업의 희석채취탐침을 직렬로 연결하여 사용하였다.

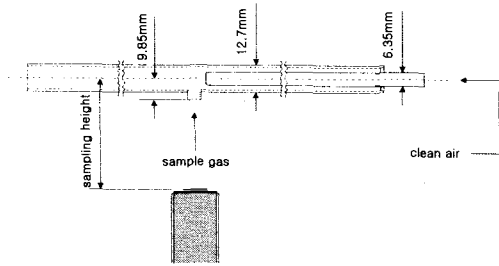


Fig.3 Schematic of the dilution sampling probe

3. 영상처리 방법 및 실험결과

3.1 영상처리 방법

응집체의 전자현미경 사진으로부터 몇몇 정보를 얻어내기 위하여 우선 사진을 스캔하여 디지털화된 이미지를 얻는다. 그리고 회색 음영의 영상을 전처리하여 흑백의 사영 영상으로 바꾼 뒤 계산을 하게 된다. 디지털 영상은 크기가 클수록 원래의 정보를 잃지 않고 간직하게 되지만 상관관계(correlation)의 수는 사영면적의 제곱에 비례하는 관계가 있으므로 디지털 영상의 크기는 계산시간에 결정적인 영향을 미친다.⁽⁶⁾ 따라서 영상의 크기는 여러 차례의 시도를 통하여 알맞은 크기를 선택하였다.

영상에서 구한 밀도자기상관계함수를 적합곡선하기 위해 overlapping sphere 함수⁽⁷⁾를 이용하였다. 이 함수는 실제 응집체의 상관관계함수를 잘 묘사한다고 알려져 있다.⁽⁸⁾

3.2 실험결과

총 194개의 응집체에 대해 영상처리를 하고 회전반경, 프랙탈 차원, 면적등가입경 등의 값을 얻었다.

프랙탈 차원 값을 분포를 보면 대부분이 1.9 이상의 값을 가지며, 그 중 많은 부분이 2에 매우 근접해 있다(Fig. 4). 본 연구보다 작은 크기의 응집체에 대하여 행하여진 기존의 연구에서 알려진 바로는 화염에서 생성된 SiO₂ 응집체의 프랙탈 차원 값이 1.7~1.8 정도이므로 본 연구에서 생

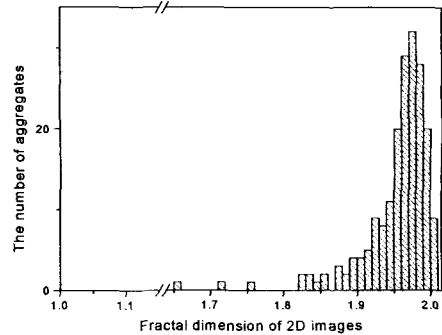


Fig.4 Distribution of fractal dimension.

성된 응집체들과 기존 연구에서 생성된 응집체들과의 구조상의 차이를 확인할 수 있었다.

한편, 삼차원 프랙탈 차원 값이 2 이상의 값을 가질 경우 이차원 사영 영상의 프랙탈 차원 값은 2에 가까운 값을 가진다고 알려져 있다. 따라서 본 연구에서 2에 가까운 프랙탈 차원 값을 가지는 많은 응집체들의 실제 삼차원 프랙탈 차원 값은 2에서 3의 범위를 가질 것이다. 본 연구에서 프랙탈 차원 값을 응집체의 형상적 정보를 나타내는 정량적 요소로 이용하려 한 것은 그 이차원 프랙탈 차원 값으로 삼차원 프랙탈 차원 값을 추정할 수 있었던 기존의 연구결과를 바탕으로 한 것이었다. 따라서 이번 연구와 같이 이차원 프랙탈 차원 값이 2 근처에 집중되어 있을 경우 이것을 형상적 변수로 이용하는 것은 타당하지 않을 것이다.

Fig. 5 에는 등가면적입경에 대한 기하평균값과 기하표준편차를 그려보았다. 그림에서 보면 각 단에서 응집체의 등가면적입경에 대한 기하표준편차는 거의 비슷한 값을 보인다. 그리고 스톡스 입경과 등가면적입경이 비례하는 관계를 나타내었다. 구형입자의 경우에는 등가면적입경과 스톡스 입경이 같은데, 그림에서 점선으로 나타낸 부분이 구형입자인 경우에 대한 스톡스 입경과 등가면적입경의 관계이다. 이와 비교해 볼 때 이번 실험에서 생성된 응집체의 경우 등가면적입경이 스톡스 입경의 세 배 정도인 것을 알 수 있다. 실리카 자체가 아닌 응집체 덩어리에 대한 밀도를 생각할 때, 응집체 사이에 존재하는 많은 공

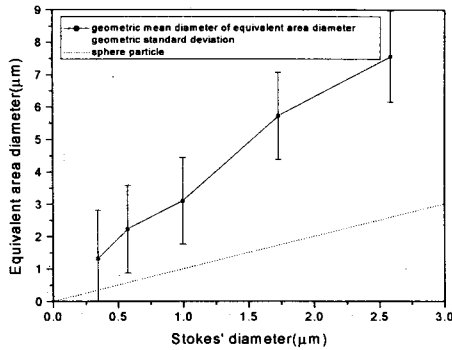


Fig.5 Proportional relation between the equivalent area diameter and the Stokes' diameter

극들은 응집체 덩어리의 밀도를 낮추는 역할을 할 것이다. 등가면적입경이 스톡스 입경보다 크게 나타나는 현상은 이와 같이 설명될 수 있다.

4. 결론

본 연구에서는 입자의 실제 형상, 크기와 공기 역학적 입경과의 상관관계를 알아보기 위하여 SiO₂ 응집체를 형성하고 관성충돌기를 이용하여 응집체를 공기역학적 입경별로 분류하여 채집한 후 각각의 응집체에 대해 TEM 사진을 촬영하여 그 형상과 크기를 측정하고 비교하였다. 실험결과에서 얻은 결론은 다음과 같다.

(1) 화염 에어로졸 반응기에서 전구체 물질을 고농도로 주입하여 공기역학적 입경을 0.4μm 이상의 크기로 성장시킨 SiO₂ 응집체의 경우 그 사영된 영상의 프랙탈 차원이 2에 근접하는 값을 나타내었다.

(2) 사영 영상의 프랙탈 차원이 2에 가까운 값을 갖는 응집체의 경우에도 면적 등가입경과 스톡스 입경은 3배 정도로 크게 차이가 났다.

(3) 본 실험에서 생성된 응집체 집단에서 스톡스 입경과 응집체의 등가면적입경은 정비례에 가까운 관계를 보였다.

이 논문은 국가지정연구실사업 및 2000년도 두뇌한국21사업에서 부분적으로 지원되었음.

참고문헌

- (1) Staber, W. and Flachsart, H., 1969, "Size-separating Precipitation of Aerosols in a Spinning Spiral Duct," Environ. Sci. Techno., Vol. 3, pp. 1280-1296.
- (2) Forrest, S. R. and Witten, T. A., 1979, "Long-range Correlations in Smoke-particle Aggregates," J. Phys. A: Math. Gen., Vol. 12, No. 5, pp. L109-L117.
- (3) Rogak, S. N. and Flagan, R. C., 1992, "Characterization of the Structure of Agglomerate Particles," Part. Part. Syst. Charact., Vol. 9, pp. 19-27.
- (4) Rogak, S. N., Flagan, R. C. and Nguyen, H. V., 1993, "The Mobility and Structure of Aerosol Agglomerates," Aerosol Science and Technology, Vol. 18, pp. 25-47.
- (5) Kasper, M., Siegmann, K. and Sattler, K., 1997, "Evaluation of an *in situ* Sampling Probe for Its Accuracy in Determining Particle Size Distributions from Flames," Vol. 28, No. 8, pp. 1569-1578.
- (6) Kruijs, F. E., Denderen, J. v., Buurman, H. and Scarlett, B., 1994, "Characterization of Agglomerated and Aggregated Aerosol Particles Using Image Analysis," Part. Part. Syst. Charact., Vol. 11, pp. 426-435.
- (7) Hurd, A. J. and Flower, W. L., 1988, "In situ Growth and Structure of Fractal Silica Aggregates in a Flame," Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 122, No.1, pp. 178-192.
- (8) Cai, J., Lu, N. and Sorensen, C. M., 1995, "Analysis of Fractal Cluster Morphology Parameters: Structural Coefficient and Density Autocorrelation Function Cutoff," Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 171, pp. 470-473.