대한위생학회지. 제17권 제2호(2002)
Korean J. Sanitation. Vol. 17, No. 2, pp11~17(2002)

디젤 입자상물질의 크기분포 특성에 관한 실험적 연구

연익준 · 권순박* · 이규원*
동림건설기술(주) 기술개발연구소, 광주과학기술원 환경공학과*

Experimental Study on the Size Distribution of Diesel Particulate Matter (DPM)

Ik-Jun Yeon · Soon-Bark Kwon* · Kyoo-Won Lee*
Technology Development Institute, DONGLIM Construction & Engineering Co. Ltd.,
Department of Environmental Science and Engineering,
*Kwangju Institue of Science and Technology**

Abstract

Diesel particulate matter (DPM) is known to be one of the major harmful emissions produced by diesel engines. The majority of diesel particles are in the range of smaller than 1㎛. Because of their tiny volume, ultrafine diesel particles contribute very little to the total mass concentration which is currently regulated for automobile emissions. Diesel particles are known to have deleterious effects upon human health because they penetrate human respiratory tract and have negative effects on the health. The measurement of the number distribution of nanometer size particles (nanoparticles) in the diesel exhaust emission is important in order to evaluate their environmental and health impact, and to develop new types of diesel particulate filters.

In this study, we directly sampled particulate matters emitted from a diesel truck mounted on the chassis dynamometer by a flow separator and dilution system, and measured the nanoparticles using two types of differential mobility analyzers combined with a Faraday cup electrometer (FCE) and a condensation particle counter (CPC). The particle size distributions were analyzed by changing engine operation condition, i.e. ratio of engine loading. The total number concentration of particles were increased with the engine loading ratio and the nanoparticles (less than 50nm) were affected by hydrocarbon (HC) concentration in the diesel exhaust.

Key word : Diesel particulate matter (DPM), Size distribution, Engine loading, Nanoparticle

I. 서 론

연소과정에서 발생하는 입자상물질은 인체에 유해하며, 사망률의 증가에도 영향을 미칠 수 있다는 연구결과가 보고되고 있다[1~6]. 위의 연구결과에서 일생동안의 사망률과 하루 중 사망률이 입자상물

질의 농도와 관련있는 것으로 통계학적으로 나타났다. 특히, 2.5㎛ 이하의 미세입자와의 강한 상관관계가 밝혀졌다. 따라서 입자상물질 특히 미세입자의 인체 위해성과 사망률과의 상관관계 등이 밝혀지면서 미세입자에 대한 사회적 관심이 증가하고 있다[7].

디젤엔진은 높은 열효율로 버스, 트럭 등의 대형 경유차에서 널리 사용되고 있지만, 디젤엔진에서 배출되는 디젤입자상물질(DPM; Diesel Particulate Matter), NO*x* 등은 최근 증가되고 있는 입자상물질에 대한 관심의 초점이 되고 있으며, 또한 대기환경을 크게 악화시키고 있다. 전체 자동차의 5%에 불과한 버스 트럭 등의 대형 경유차가 자동차로 인한 대기 오염비중의 54%를 차지하고 있으며, 경유차에서 배출된 NO*x* 및 입자상물질이 전체 대기오염물질 중 NO*x*의 67%, 입자상물질의 85%를 차지한다고 보고[8]되고 있으며, 이미 많은 연구결과 디젤엔진에서 배출되는 입자상물질이 인체에 유해하다고 알려져 있기 때문에 세계적으로도 활발한 연구가 진행되고 있으며 선진국에서는 디젤엔진에서 배출되는 입자상물질의 배출 허용기준을 강화하고 있는 실정이다. 하지만 최근에는 디젤엔진에서 배출되는 입자상물질의 총 질량보다는 질량이 적은 미세 입자들이 인체에 더욱 유해하다는 연구결과가 보고되고 있어 질량기준의 규제나 측정보다는 입자상물질의 입경분포에 대한 관심이 증가하고 있는 추세이다[9~11].

디젤엔진에서 배출되는 입자상물질의 크기분포 측정에 관한 연구에는 여러 가지 측정장비들이 사용된다. 가장 널리 사용되는 장비로는 미국 TSI사의 scanning mobility particle sizer (SMPS)로 입자상물질의 전기적 이동도 차이를 이용하여 약 0.005~1㎛ 크기의 미세입자의 크기분포를 측정할 수 있다. SMPS를 개발하기 전에는 다단 임팩터(cascade impactor), 광학적 입자측정기 그리고 확산 배터리(diffusion battery) 등을 이용하였으나, 1980년대 후반 이후에는 전기적 이동도 차이를 이용한 SMPS 장비가 각광 받기 시작하였다[9,12,13].

SMPS는 DMA (differential mobility analyzer)와 CPC (condensation particle counter) 그리고 이 두 장비를 통합 조절하며 데이터를 수집 · 해석하는 컴퓨터로 구성되어 있다. DMA는 다분산(polydisperse) 입자를 Kr-85 방사능 중화기에 노출시켜 전기적으로 중화시킨 뒤 입자의 전기적 이동도 차이를 이용하여 입자를 크기별로 분류해내는 장비이다. CPC는 크기별로 분류된 단분산 입자들의 개수를 광학적으로 측정하게 되고, DMA내에서 변화된 전압을 통해 다양한 크기의 단분산 입자들이 연속적으로 CPC에 보내져, 전체 입자들의 입경분포의 자료를 얻어낼 수 있게 된다. 최근에 개발되어 보급되고 있는 장비로는 핀란드 Dekati사의 electrical low pressure cascade impactor (ELPI)로, 저압 다단임팩터와 전기적 측정장치를 결합하여 약 0.03~10㎛의 입자의 크기분포를 실시간으로 측정할 수 있다. SMPS와 ELPI는 디젤엔진에서 배출되는 입자상물질의 크기분포의 실시간 측정이 가능하기 때문에 다른 장비들에 비하여 앞으로도 지속적으로 사용될 것으로 보인다.

본 연구에서는 SMPS 장치를 이용하여 실험실에 설치된 디젤트럭에서 발생되는 입자상물질의 크기분포를 엔진의 운전조건에 따라 측정하였다. 입자상물질의 측정을 위해서, 배기관의 가스 중 일부를 채취하여 희석관에서 적정수준으로 희석한 뒤, SMPS를 이용하여 측정하였다. 입자상물질의 크기분포는 엔진의 운전조건에 따라 크게 영향을 받는 것으로 나타났으며, 엔진의 운전조건이 동일하다 할지라도 불안정한 분포특성을 나타내는 것으로 조사되었다. 이러한 불안정한 분포특성은 SMPS와 동시에 측정된 가스성분 분석결과와 비교되었는데, 약 10nm 크기 이하의 입자들은 배기가스 중 탄화수소(HC)량과 선형의 상관관계가 있는 것으로 밝혀졌다.

Ⅱ. 실험 내용 및 방법

디젤 입자상물질의 크기분포 측정을 위하여 DMA, CPC 및 입자 전류측정기(aerosol electrometer)가 함께 사용되었다. DMA는 다분산(polydisperse) 입자 들 중에서 필요한 크기의 단분산(monodisperse) 입자만을 골라내며, 작동범위는 Long DMA의 경우 약 0.01~1.0㎛ 크기의 입자를 그리고 Nano DMA의 0.003~0.5㎛ 의 입자를 일

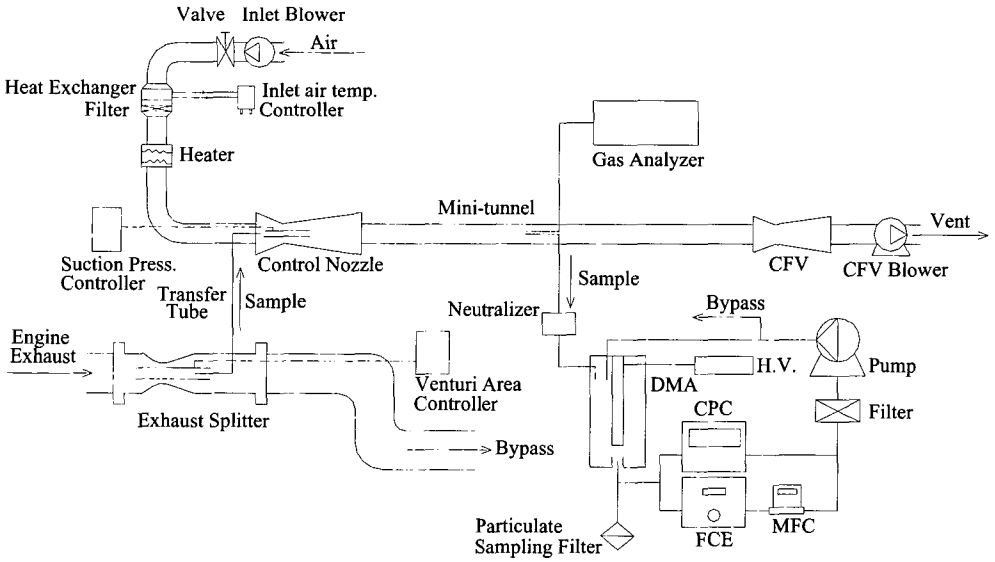

Fig. 1. Experimental diagram of the experimental system.

정크기로 분리할 수 있다[14]. CPC는 DMA에 의하여 일정크기로 분리된 입자의 개수농도를 측정하는 장치이며, 입자 전류측정기는 입자가 가지고 있는 총 하전량을 측정하는 장치이다. 단위 입자의 하전량을 알고 있다면, 총 하전량 측정을 통해 입자의 개수농도로 환산이 가능하다. 나노입자 영역(0.05㎛ 이하)에서 입자 전류측정기는 CPC에 비하여 보다 정확한 측정값을 얻을 수 있다. 이는 측정과정에서 나노입자의 확산 침착에 의한 손실을 최소화할 수 있기 때문이다. 본 연구에서는 미세입자의 보다 정확한 개수농도 측정을 위하여 CPC와 함께 입자 전류측정기를 동시에 사용하였다.

Fig. 1은 디젤입자상물질 측정을 위한 실험장치도를 나타내고 있다. 디젤엔진에서 배출되는 가스는 이송관(transfer tube)를 통해 콘트롤 노즐로 보내어 진다. 그리고 미니희석터널(mini dilution tunnel)에서 온도와 습도가 조절되는 깨끗한 공기와 희석되며, 이 중 일부가 분리되어 측정시스템으로 도입된다. DMA를 통과하기 전 입자상물질이 가지고 있는 전기적 특성을 제거하기 위하여 중화기(neutralizer)가 사용되고, 중화기를 통과한 입자상물질은 DMA에서 크기에 따라 분리된다. 중화기에서는 방사선 물질의 붕괴를 이용하여 입자의 하전분포가 볼쯔만(Boltzmann) 분포를 이루도록 한다. DMA의 전극봉에 인가된 전압을 조절하여 원하는 크기의 입자를 분리해 낼 수 있다. DMA는 작동범위에 따라 두 가지 종류가 주로 사용되는데, 일반적으로 사용되는 Long DMA 와 나노입자의 분리를 위해 사용되는 Nano DMA로 구분된다. Nano DMA는 전극봉의 길이를 줄이고, DMA내 나노입자들의 확산 침착 손실을 최소화하도록 한 장치로서, 약 3nm 크기의 입자까지 분리 할 수 있는 것으로 알려져 있다.

본 연구에서는 0.01~0.2㎛를 측정하기 위해서 Long DMA를, 0.005~0.1㎛의 입자를 측정하기 위해서 Nano DMA를 각각 사용하였다. 분리된 입자는 CPC와 입자 전류측정기를 사용하여 그 개수 또는 입자에 의한 총 전류를 측정하였다. 입자의 크기가 작아지면서 CPC의 측정효율이 낮아지기 때문에 이를 보완하기 위하여 입자전류측정기를 사용하였다. 디젤입자상물질의 측정은 엔진의 운전조건을 공회전(idling)일 때와 60 km/hr로 작동시킬 때로 구분하였으며, 60km/hr에서의 엔진 부하율(loading ratio)은 각각 25%, 50%, 그리고 75%로 고정하여 그 영향을 평가하였다. 실험은 차대동력계에 설치된 디젤트럭을 이용하여 이루어졌으며 장착된 엔진은 배기량 3,400L, 직접분사(direct injection) 방식의 엔진이다. 실험은 엔진의 운전조건

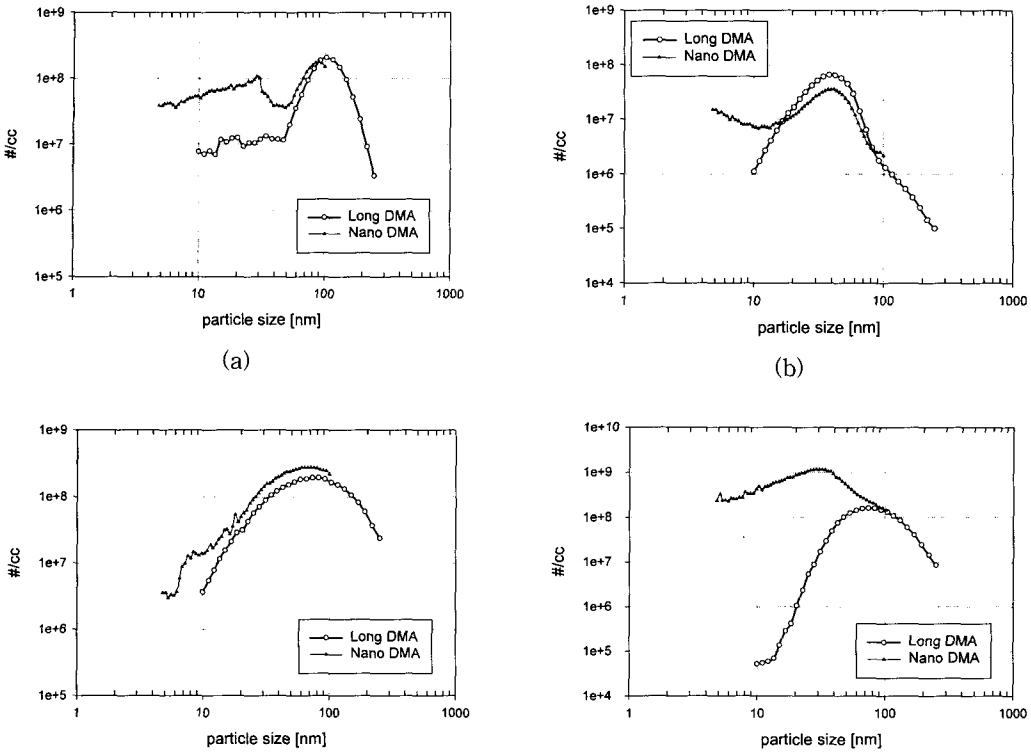

Fig. 2. Size distribution of diesel particles for different engine conditions: (a) idling, (b) 25% engine load, (c) 50% engine load, and (d) 75% engine load

인 차속과 부하율을 동시에 조절하여 이루어졌으며, 운전조건이 안정화(steady state) 되었을 때 입자상물질을 측정하였고, 같은 조건에서 세 번의 측정결과를 평균한 값으로 결과를 나타내었다.

Ⅲ. 결과 및 고찰

Fig. 2 (a)~(d)는 공회전, 60km/hr에서 각각 25%, 50%, 75%의 부하율일 때의 디젤 입자상물질의 측정결과를 나타내고 있다. Long DMA는 10~200nm의 측정범위를 그리고 Nano DMA는 5~100 nm의 측정범위에서 작동되었다. 입경 측정범위가 중복되는 구간에서는 50%의 엔진 부하율인 경우를 제외하고는 경향이 잘 일치하고 있는 것으로 나타났다. 그러나 입자의 직경이 작아질수록 Long DMA와 Nano DMA의 측정결과는 큰 차이를 나타내고 있으며, Nano DMA의 측정결과가 보다 높은 개수농도를 나타내고 있다. 이는 입자의 크기가 작아질수록 입자의 브라운 운동(Brownian motion)이 활발해 지기 때문에 이로 인한 내부손실이 Long DMA의 경우에 더욱 크기 때문이다. 공회전시 관측되는 평균직경은 약 38nm로 60km/hr로 달릴 때의 평균직 70~100nm에 비하여 작은 것으로 나타났다. 이러한 경향은 엔진의 공회전시 연료의 불완전 연소에 의한 nuclei 모드 입자의 발생에 의한 것으로 Krüger 등[10]과 Rikeard 등[11]의 연구결과와 잘 일치한다.

Fig. 3은 엔진의 운전조건에 따른 총 입자개수농도와 50nm 이하의 나노입자의 개수농도 변화를 보여주고 있다. 총 입자개수농도는 공회전시에 비하여 약 3~5배가 증가하나 나노입자의 경우에는 엔진부하율이 25%와 50%일 때 오히려 더 적게 발생됨을 알 수 있다. 결국 입자의 개수농도 분포는 엔진의 부하율이 증가하면서 크기분포는 입자

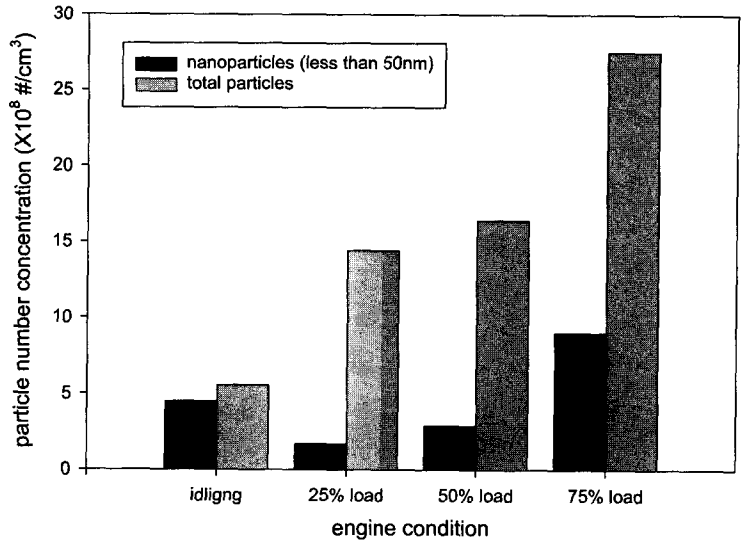

Fig. 3. Number concentration of diesel particles for different engine conditions.

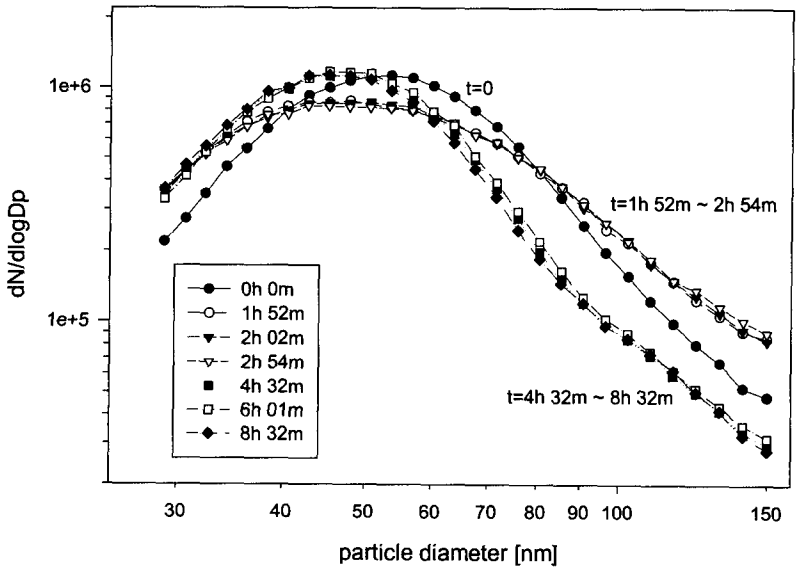

Fig. 4. Size distribution changes with respect to engine operation time for idling condition.

의 직경이 큰 쪽으로 이동된다는 것을 알 수 있다. 이러한 경향은 Kittelson 등과 Graskow 등의 측정 결과와 잘 일치하고 있다.[15,16]

Fig. 4는 엔진 공회전시 발생되는 입자상물질의 크기분포를 시간에 따라 측정한 결과를나타내고 있다. 초기에 측정된 입자상물질 총 개수농도의 9 시간 후에 7% 정도 감소하였다. 50nm이하의 나노 입자들은 개수농도는 30% 증가한 반면 50nm 이상의 입자 개수농도는 약 33% 감소하였다. 엔진의 운전조건이 공회전으로 동일하게 유지되었지만, 이러한 크기분포의 차이가 나타나는 것은 아직까지 정확하게 그 원인이 밝혀지지 않았다. 그러나 본

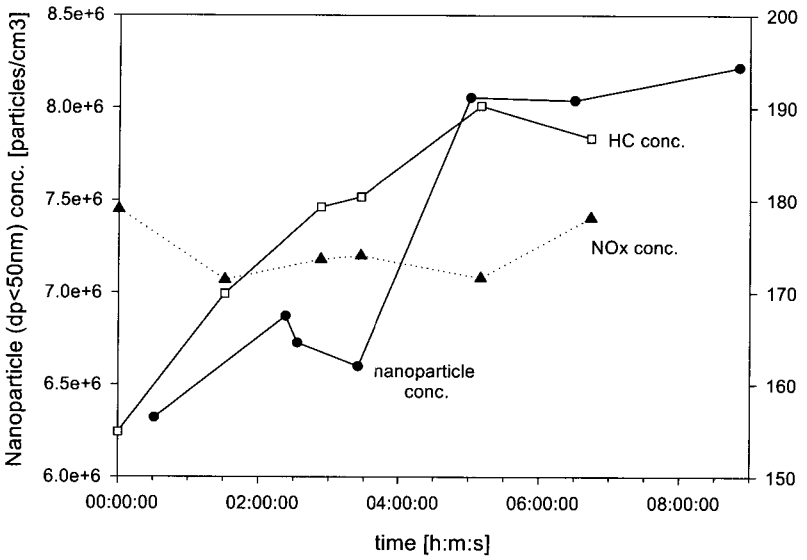

Fig. 5. Correlation with the number concentration of nanoparticles and the concentration of HC and NOx.

연구에서는 입자상물질의 크기분포 측정과 함께, 가스상물질의 분석이 이루어 졌으며, 그 결과 나노입자의 개수농도와 탄화수소 농도와의 상관관계를 얻어 낼 수 있었다.

Fig. 5는 엔진 공회전시 입자상물질의 측정과 동시에 수행된 가스분석기의 측정결과를 나타내고 있다. 그림에서처럼, 50nm 이하의 나노입자와 탄화수소 농도사이에서 양의 상관관계가 나타남을 알 수 있다.

Ⅳ. 결 론

대기 중 부유하는 입자상물질에 의한 질병 또는 사망률 증가에 대한 연구가 활발하게 진행됨에 따라 입자상물질에 대한 관심이 증대되고 있다. 대기 중 부유하는 입자상물질의 대부분은 경유자동차에서 배출된다고 알려져 있으며, 이를 제어하기 위한 여러 가지 연구가 시도되고 있다. 이러한 연구 중에서 가장 근본적인 연구 중 하나는 입자상물질의 크기에 따른 인체의 위해성을 평가하는 일이며, 이를 위해서는 입자상물질의 크기분포 특성연구가 선행되어야 한다. 본 연구에서는 디젤트럭에서 배출되는 입자상물질을 엔진의 운전조건에 따라 측정하였으며, 같은 엔진조건에서도 엔진연소과정의 미세한 변화에 의해 달라지는 특성을 가스분석 결과와 함께 분석하였다.

엔진 공회전시에 발생하는 입자상물질은 평균직경이 약 38nm로 시속 60㎞로 달릴 때 발생되는 입자상물질에 비하여 두 배정도 작은 것으로 나타났으며, 엔진의 부하가 증가할수록 배출되는 입자의 총 개수농도는 증가하는 것으로 측정되었다. 그러나 50nm 이하의 입자의 개수농도는 공회전시에 상대적으로 많이 발생되는 것으로 나타났다. 엔진의 조건을 공회전 상태로 연속 9시간 작동시킨 뒤, 입자상물질의 크기분포 변화를 측정하였으며, 그 결과 배출가스 중 탄화수소의 변화와 50nm 이하의 나노입자의 개수농도와의 상관관계가 밝혀졌다. 또한 디젤입자의 측정에 널리 사용되고 있는 Long DMA에 의한 측정결과는 미세입자 영역에서 입자의 개수농도를 과소평가할 수 있는 것으로 나타났다. 이는 Nano DMA의 측정결과를 통하여 확인할 수 있었다. 끝으로, 디젤엔진에서 배출되는 입자상물질의 크기분포는 엔진의 운전조건 뿐만 아니라, 희석시킬때의 조건(희석비, 희석공기의 온 · 습도)에 따라 크게 영향을 받기 때문에 이에 대한 더 많은 연구가 필요할 것으로 보인다.

감사의 글

본 연구를 수행하는데 있어 실험장비 및 조언을 아끼지 않았던 일본 National Institute of Advanced Industrial Science and Technology 의 Takafumi Seto, Keizo Saito 박사와 Osamu Shinozaki 연구원님께 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. Burnett, R. T., Dales, R., Krewski, D., Vincent, R., Dann, T., and Brook, J .F. :Associations between ambient particulate sulfate and admissions to Ontario hospitals for cardiac and respiratory diseases, Am. J. Epidemol. 142, 15-22, 1995.
2. Dockery, D. W., Schwarz, J., and Spengler, J. D. : Air pollution and daily mortality ;Associations with particulates and acid aerosols, Environ. Res., 59, 362-367, 1992.
3. Dockery, D. W., Pope III, C. A., Xu, X., Spengler, J. D., Ware, J. H., Fay, M. E., Ferris, B. G. and Speizer, F. E. : An association between air pollution and mortality in six U.S. cities, The New England J. Med., 329, 1753-1759, 1993.
4. Pope, C., Schwartz, J., and Ransom, M. : Daily mortality and PM10 pollution in Utah Valley, Arch. Environ. Health, 47, 211-217, 1992.
5. Samet, J. M., Dominici, F. D., Curriero, F. C., Coursac, M. S., and Zeger, S. L. : Fine particulate air pollution and mortality in 20 U.S. cities, 1987-1994, The New England J. Med., 343, 1742-1749, 2000.
6. Schwartz, J., Dockery, D. W., and Neas, L. M. : Is daily mortality associated specifically with fine particles? J. Air Waste Manag. Assoc., 46, 927-939, 1996.
7. Donaldson, K., Li, X. Y., and MacNee, W. : Ultrafine (nanometer) particle mediated lung injury, J. Aerosol Sci., 29, 553-560, 1998.
8. 매연 후처리장치 성능실험 결과 발표집, 국립환경연구원, 5-25, 1998.
9. Dürnholz, L. and Lüders, H. : Effects of a Diesel Particulate Filter on Particle Size Distribution of a Heavy Duty Diesel Engine, Corning Particle Sizing Program - Final Report, 1997.
10. Krüger, M., Lüders, H., Lüers, B., Kaufmann, R., Koch, W., and Kauffeldt, T. : Influence of Exhaust Gas Aftertreatment on Particulate Characteristics of Vehicle Diesel Engines", Research Report of the Forschungsvereinigung Verbrennungskraftmaschinen e.V. (FVV), 1997.
11. Rickeard, D. J., Bateman, J. R., Kwon, Y. K., McAughey, J. J., and Dickens, C. J. : Exhaust Particulate Size Distribution : Vehicle and Fuel Influences in Light Duty Vehicles, SAE paper 961980, 1996.
12. Joumard, R., and Perrin, M. : Measurement of Particle and Gaseous Pollution of the Atmosphere Due to Buses, The Sci. of the Total Environ., 76, 55-62, 1998.
13. Kittelson, D. B. : Engines and Nanoparticles, J. Aerosol Sci. Review, 29, 575-588, 1998.
14. 안강호, 김남효, 이종호, 배귀남 : Differnetial Mobility Anayzer (DMA)내의 입자운동 및 특성 분석, 대한기계학회논문집(B), 20, 6 , 2005-2013, 1996.
15. Kittelson, D. B., Johnson, J., Watts, W., Wei, Q., Drayton, M., and Paulsen, D. : Diesel Aerosol Sampling in the Atmosphere, SAE paper 2001-01-2212, 2001.
16. Graskow, B. R., Kittelson, D. B., Abdul-Khalek, I. S., Ahmadi, M. R., and Morris, J. E. : Characterization of Exhaust Particulate Emissions from Spark Ignition Engine, SAE paper 980528., 1998.