

단극하전 나노입자의 응집성장 과정에서 입자의 전기전도도의 효과에 대한 연구

박형호[†] · 김상수* · 장혁상**

(2002년 4월 24일 접수, 2002년 12월 30일 심사완료)

Effects of the Particle Electric Conductivity on the Aggregation of Unipolar Charged Nanoparticles

Hyungho Park, Sangsoo Kim and Hyuksang Chang

Key Words : Brownian Dynamic Simulation(브라운 운동 모사법), Aggregation(응집), Aggregate(응집체), Fractal Aggregate(프랙탈 응집체), Charged Particle(하전 입자), Electric Conductivity(전기 전도도), Conductor(전도체), Nonconductor(부도체)

Abstract

Effects of the electric conductivity of particles were studied for the aggregation process of charged particles with a Brownian dynamic simulation in the free molecular regime. A periodic boundary condition was used for the calculation of the aggregation process in each cell with 500 primary particles of 16 nm in diameter. We considered two extreme cases, a perfect conductor and a perfect nonconductor. The electrostatic force on a particle in the simulation cell was considered as a sum of electrostatic forces from other particles in the original cell and its replicate cells. We assumed that aggregates were only charged with pre-charged primary particles. The morphological shape of aggregates was described in terms of the fractal dimension. The fractal dimension for the uncharged aggregate was $D_f = 1.761$. However, the fractal dimension decreased from 1.694 to 1.360 for the case of the perfect conductor, and from 1.610 to 1.476 for the case of the perfect nonconductor, with the increase of the average number of charges on the primary particle from 0.2 to 0.3. These values were smaller than that of the centered charge case.

기호설명	
d_0	: 기본 입자의 직경 [m]
D_f	: 질량 프랙탈 차원
F	: 정전기력 [kg m s^{-2}]
k_b	: 볼츠만 상수 [$\text{kg m}^2 \text{s}^{-2} \text{K}^{-1}$]
k_e	: 쿨롱 상수 [$\text{kg m}^3 \text{s}^{-2} \text{C}^{-2}$]
m_p	: 응집체의 질량 [kg]
m_0	: 기본 입자의 질량 [kg]
n	: 응집체를 이루는 기본 입자의 수
N_0	: 계산 격자에 있는 기본 입자의 총 수

N	: 계산 격자에 있는 응집체의 총 수
Q	: 하전 응집체의 기본 전하 수
q_i, q_j	: i, j 번째 응집체의 전하량 [C]
r	: 응집체의 변위 [m]
r_0	: 응집체의 질량 중심 [m]
R_g	: 응집체의 회전반경 [m]
t	: 시간 [s]
T	: 기체 온도 [K]
u	: 응집체의 속도 [m s^{-1}]
X	: 랜덤 힘 [kg m s^{-2}]

* 회원, 한국과학기술원 기계공학과
 ** 회원, 영남대학교 환경공학과
 † 책임저자, 회원, 한국과학기술원 기계공학과
 Email : phh@aptl.kaist.ac.kr
 TEL : (042)869-3061 FAX : (042)869-3095

그리스문자
 β : 마찰상수 [s^{-1}]
 ϕ : 전기에너지 [$\text{kg m}^2 \text{s}^{-2}$]
 ρ : 입자의 부피 분율
 τ : 단위 시간 [s]

τ_i : 무차원 시간 $(t/\tau)\rho$

하첨자

k : 직교좌표의 각 성분 $k=1, 2, 3$

1. 서론

나노 입자의 응용분야가 광범위해 지면서, 입자 생성 공정에서 나노 입자의 크기와 형상을 제어하는 것이 중요한 문제로 대두되었다.⁽¹⁾ Xiong 등⁽²⁾은 전기적인 힘을 이용하여 응집을 제어하는 방법을 제시하였다. 그러나 그들의 결과는 입자가 항상 구형으로 성장한다는 가정에 근거한 것이기 때문에, 일반적으로 비구형으로 성장하는 응집과정을 모사하기 어렵다. 비구형 응집성장 과정은 개별 입자의 거동을 모사하는 브라운 운동 모사법을 이용하여 정밀하게 계산할 수 있으며, 확산 제한형 응집과정(Diffusion Limited Cluster Aggregation, DLCA)에 의해 발생하는 응집체의 프랙탈 차원은 1.7 ~ 1.9의 값을 갖는 것으로 알려져 있다.⁽³⁾ 우리는 지난 연구⁽⁴⁾에서 무한 수의 하전 입자 사이에 작용하는 정전기력을 계산하여 브라운 운동을 하는 하전 입자의 비구형 응집성장 과정을 모사하였다. 그 결과, 양극성으로 대전된 입자는 중성입자의 응집성장과정과 유사한 특성을 보임을 알 수 있었으며, 반면 단극성으로 대전된 경우, 중성입자보다 낮은 프랙탈 차원을 갖는 개방형 응집체가 생성됨을 알 수 있었다. 일반적으로 프랙탈 차원이 높은 응집체를 얻는 방법은 소결과정(Sintering) 이나 반응 제한형 응집과정(Reaction Limited Cluster Aggregation, RLCA) 등⁽⁵⁾이 있다. 그러나 아직까지 프랙탈 차원을 낮추는 방법에 대해서 제시된 이론이 없는 실정이다. 따라서 입자를 단극성으로 대전하여 응집체의 프랙탈 차원을 낮추는 방법은 촉매의 비표면적을 확대시키거나 응집체 성장을 제어하는데 적절한 방법으로 생각된다. 우리의 연구⁽⁴⁾는 계산의 편의를 위하여 응집체 위의 전하가 응집체 중심에 집중되어 있다는 가정에서 진행되었다. 그러나 일반적으로 응집체 위의 전하 위치는 응집체를 이루고 있는 기본 입자의 전기 전도도에 따라 달라지게 되어, 응집체 주위의 전기장도 변하게 된다. 전기장의 분포가 변하게 되면 입자의 응집에 관여하는 전기력이 변하게 되어 응집특성의 변화가 예상된다. 아직까지 응집체 위의 전하 위치에 따라 전기장의 변화정도가 정량적으로 연구된 바가 없기 때문에 위의 결과에

대한 물리적 타당성은 의문으로 남는다.

따라서 본 연구에서는 입자의 전기 전도도에 따라 응집체 위의 전하분포가 변하는 것을 고려하여 하전 입자의 응집 성장과정을 모사하고자 한다.

이와 같은 계산을 수행하기 위하여 미리 대전된 기본입자의 응집과정을 대상으로 하였고, 입자가 전기적으로 도체인 경우와 부도체인 경우에 대하여 하전량을 달리하여 계산하였고, 그 결과를 전하가 응집체 중심에 집중된 경우와 비교해 보았다.

2. 이론

2.1 응집체의 지수 법칙

Forrest 와 Witten⁽⁶⁾은 Hausdorff 차원을 사용하여 에어로졸 응집체의 프랙탈 특성을 연구하였다. 그들은 실험을 통해 특성길이와 기본입자의 개수 사이에 다음과 같은 지수 관계가 있음을 확인하였다.

$$n \sim R_g^{D_f} \quad (1)$$

여기에서 R_g 는 회전반경으로 $R_g^2 = (1/n) \sum (r_i - r_0)^2$ 이며, r_0 는 응집체의 질량중심이며 $r_0 = (1/n) \sum r_i$ 이 된다.

2.2 랑계빈 방정식과 방정식의 해

입자가 주변 기체와 열역학적인 평형상태에 놓여있을 때, 브라운 운동에 의한 개별입자의 불규칙적인 병진 운동은 다음과 같은 랑계빈 방정식⁽⁷⁾으로 표현된다.

$$\frac{d(m_p u_k)}{dt} = F_k - m_p \beta u_k + X_k \quad (2)$$

X_k 는 가우시안 랜덤 분포(Gaussian Random Distribution)를 갖는 통계적인 힘으로 나타나며 다음과 같이 평균과 제곱평균 값을 갖는다.

$$\langle X_k \rangle = 0, \quad \langle X_k^2 \rangle = 2\beta m_p k_b T \quad (3)$$

Ermak 과 Buckholz⁽⁷⁾은 다음과 같이 속도와 변위에 대한 식을 유도하였다.

$$u_k = u_{0,k} e^{-\beta} + \frac{F_{0,k}}{m_p \beta} (1 - e^{-\beta}) + B_1 \quad (4)$$

$$r_k = r_{0,k} + \frac{1}{\beta} \left(u_k + u_{0,k} - \frac{2F_{0,k}}{m_p \beta} \right) \left(\frac{1 - e^{-\beta}}{1 + e^{-\beta}} \right) + \frac{F_{0,k}}{m_p \beta} t + B_2 \quad (5)$$

여기에서 위식의 B_1 과 B_2 는 가우시안 랜덤 분포를 갖는 랜덤변수로서 다음과 같은 특성을 갖는다.

$$\begin{aligned} \langle B_1 \rangle &= 0 \\ \langle B_1^2 \rangle &= \frac{k_b T}{m_p} (1 - e^{-2\beta}) \\ \langle B_2 \rangle &= 0 \\ \langle B_2^2 \rangle &= \frac{2k_b T}{m_p \beta^2} \left[\beta t - 2 \left(\frac{1 - e^{-\beta}}{1 + e^{-\beta}} \right) \right] \end{aligned} \quad (6)$$

3. 수치 계산

3.1 입자 하전

기본입자의 하전량은 Adachi 등⁽⁸⁾의 결과를 이용하여 결정하였다. 기본입자의 하전량은 주로 입자의 크기와 이온농도, 그리고 거주시간 등에 의해 결정된다. 본 계산은 16 nm의 기본입자에 대하여 수행되었는데, 그들의 결과에 의하면 16 nm의 작은 입자는 부분적으로 하전 된다고 하였다. 따라서 본 연구에서는 기본 입자의 평균 하전량 0.3을 최대로 하였다. 이 경우 기본입자의 30%가 각각 단일 전하를 갖는 경우를 나타낸다.

3.2 초기 조건

기본입자는 통계적으로 균일한 수 농도로 분포되어있다고 가정하였고, 이때 위치는 3 차원의 각 성분부에 대하여 균일 난수 발생 법(Uniform Random Number Generator)을 이용하여 결정하였다.

한편, 초기 기본 입자는 주변 기체와 열적인 평형 상태에 놓여 있기 때문에, 속도는 각 방향에 대하여 평균이 0 이고, 분산이 $k_b T/m_0$ 인 특성을 갖는 기우시안 분포에서 무작위적으로 선택하여 결정하였고, 연구에서는 표준 난수 발생 법(Normal Random Number Generator)을 이용하여 초기 속도 값을 얻었고, 본 계산은 전체 계산영역에서 기체의 온도를 $T = 1500$ K로 고정하여 계산하

였다.

각 변의 길이가 496 nm의 입방체를 계산영역으로 하였고, 계산영역에 포함된 기본입자의 수는 500 개로 고정하였다. 따라서 이 경우 입자의 부피 분율은 $\rho = 0.087$ 로서, 4.06×10^{15} /cc의 수농도를 갖는다. 한편 계산의 특성상 랜덤변수를 사용하기때문에 통계적으로 유용한 결과를 얻기 위하여 동일 조건에 대하여 10 회 계산하여 평균치를 택했다.

수치 모사에서 사용한 단위 거리는 기본입자의 직경으로 하였고, 단위시간은 $\tau = (m_0 d_0^2 / k_b T)^{1/2}$ 으로 주어진 온도와 기체조건에서 기본입자가 평균 속력으로 기본입자의 크기만큼 움직이는데 걸리는 시간으로 하였다. 여기에서 m_0 는 기본입자의 질량을 나타내며, 입자의 밀도는 2.0 g/cc 로 하였다. 또한 실제 계산은 단위시간의 1/50에 해당하는 시간 간격으로 계산하여, 수치 계산상 발생할 수 있는 충돌 응집체 간의 겹침 효과(Over Lap)를 최소화하였다.

3.3 경계 조건

본 연구에서는 계산 격자 내부의 기본입자의 부피 분율을 일정하게 유지하는 주기적 경계 조건(Periodic Boundary Condition)을 사용하였고, 무한 하전 입자에 의해 작용하는 정전기력을 계산하기 위하여 개선된 정전기력(Modified Electric Force)⁽⁴⁾을 이용하였으며, 개별 응집체가 받는 전기력은 응집체에 포함된 기본입자가 받는 전기력의 총합으로 계산하였다.

3.4 응집체 위의 전하 위치

응집과정에서 입자의 전기 전도도를 고려하기 위해서 전하 이완 시간(Charge Relaxation Time, τ_c)과 응집 특성 시간(Coagulation Characteristic Time, τ_c)을 비교 하였다. 전하 이완 시간은 두개의 하전된 응집체가 충돌하여 새로운 응집체를 형성하였을 때, 응집체 내부의 전하들이 새로운 전기적 평형상태의 위치로 재배치 될 때까지 걸리는 특성 시간으로 정의하였다. 전하 이완 시간의 5 배에 해당하는 시간이 경과하면 전하는 완전히 평형상태에 도달하는 것으로 알려져 있다.⁽⁹⁾ 따라서 전기 전도도가 높을수록 전하 이완 시간은 짧아지게 된다. 전하 이완 시간은 다음과 같이 정의 된다.

$$\tau_c = \rho_v \epsilon_0 \epsilon_r \quad (7)$$

ρ_v : particle resistivity

ϵ_0 : permittivity of vacuum

ϵ_r : relative permittivity of a particle

한편, 응집 특성 시간은 주어진 배경 기체와 입자의 수농도 조건으로부터 영향을 받는데, 입자 상호간 평균 1 회의 충돌이 발생하여 수농도가 초기의 절반이 될 때까지 소요되는 시간으로 정의하였다. 응집 특성 시간은 다음과 같다.

$$\tau_c = \frac{\tau}{\rho}, \quad \text{at } N/N_0 = 1/2 \quad (8)$$

여기에서 τ 는 본 계산에서 사용한 단위 시간이고, τ_1 은 무차원 시간, 그리고 ρ 는 계산 영역에서 기본입자가 차지하는 부피 분율을 나타낸다. 따라서 전하 이완 시간이 응집 특성 시간보다 매우 짧은 경우, 입자는 응집 과정에서 전기적으로 도체로 볼 수 있으며, 반대로 전하 이완 시간이 응집 특성 시간보다 매우 긴 경우, 입자는 전기적으로 부도체로 볼 수 있다.

부도체의 경우 전하가 이동하지 않기 때문에, 전하는 기본입자의 중심에 고정되어 있으며 응집이 일어나더라도 다른 기본입자로 전달되지 않는다. 이와 달리 입자가 전도체이면, 응집체 위의 전하는 응집체 내부의 전기에너지를 최소로 하는 위치에 분포하게 된다. 본 계산에서는 응집체 내부의 전하분포를 응집체를 이루는 각각의 기본입자가 갖는 전하량을 계산함으로써 구하였다. 이때 각 기본입자에 포함된 전하는 기본입자의 중심에 모여있다고 가정하였다. 이와 같은 가정은 구의 다중 결합체의 전하분포를 구하는 효과적인 방법으로 알려져 있다.⁽¹⁰⁾ 해당 응집체의 전하량이 주어지고, 응집체를 이루는 기본입자의 기하학적 위치가 고정된 경우, 응집체 내부의 전기에너지를 최소로 하는 전하 분포는 라그랑지 승수 법(Method of Lagrange Multipliers)⁽¹¹⁾을 이용하여 계산할 수 있다.

$$\sum_{i=1}^n Q_i = Q \quad (9)$$

$$\frac{\partial}{\partial Q_i} \left[\Phi_i + \Phi_s + \lambda \left(\sum_{i=1}^n Q_i - Q \right) \right] = 0 \quad \text{for all } i \quad (10)$$

식 (9)은 식 (10)의 계산에 대한 제한조건으로서 Q 는 n 개의 기본입자로 이루어진 응집체가 갖는 총전하량으로서 알고 있는 값이고, Q_i 는 각 기본입자가 갖는 전하량을 나타내며 식 (10)과 연립해

서 구해져야 하는 값이다. 한편 식 (10)에서 Φ_s 는 $\sum k_e Q_i^2 / 2R_0$ 로서 기본입자 들에 의해서 만들어지는 자기에너지 (Self Energy)이며, Φ_i 는 $(1/2) \sum \sum k_e Q_i Q_j / |r_i - r_j|$ 로서 기본입자 상호간에 의해 만들어지는 상호 작용 에너지 (Pairwise Interaction Energy) 이고, λ 는 라그랑지 승수 (Lagrange Multipliers)이다. 따라서 식 (9)과 (10)로 표현된 $n+1$ 개의 선형 방정식을 풀면 각 기본입자가 갖는 전하량을 구할 수 있다.

위와 같은 계산을 통해 응집체 위의 전하 분포가 구해지면 다음의 식을 이용해서 개별 응집체가 받는 정전기력을 구할 수 있다.

$$F_i = - \sum_{m=1}^{n(i)} \nabla \phi_m \quad (11)$$

$$= - \sum_{m=1}^{n(i)} \sum_{j>n(i)}^{N_0} k_e q_m q_j [\nabla \psi_1(r_{mj}) + \nabla \psi_2(\vec{r}_{mj})]$$

$n(i)$: number of primary particles in i^{th} aggregate

N_0 : total number of primary particles in a simulation cell

q_m : charge quantity of m^{th} primary particle

한편, 여기에서 ψ_1 과 ψ_2 는 무한 하전입자에 의하여 형성되는 전위로서 공간상에서 위치만의 함수이며, 각각 등방성 항과 비등방성 항을 나타낸다.⁽¹²⁾

위의 식은 응집체 중심에 전하가 집중된 경우와 달리, 응집체를 이루고 있는 개별 기본 입자가 모두 정전기력을 유발하는 요소로 작용하기 때문에 응집체가 받는 정전기력이 응집체를 이루는 개별 기본 입자가 받는 정전기력의 벡터합으로 표현된다.

3.5 계산 과정

두 응집체에 속해있는 임의의 기본입자 가운데 서로 최단거리에 있는 기본입자 사이의 거리가 기본입자의 크기만큼이 되면, 두 응집체가 충돌하여 새로운 응집체를 형성한다고 보았으며, 충돌 후 부착 확률은 1로 하였다. 또한 응집전후에 운동량과 전하량은 보존되며, 응집이 일어난 후 새로 생성된 응집체는 곧바로 기체와 열적인 평행상태에 도달하여 다시 브라운 운동을 한다. 이때 새로운

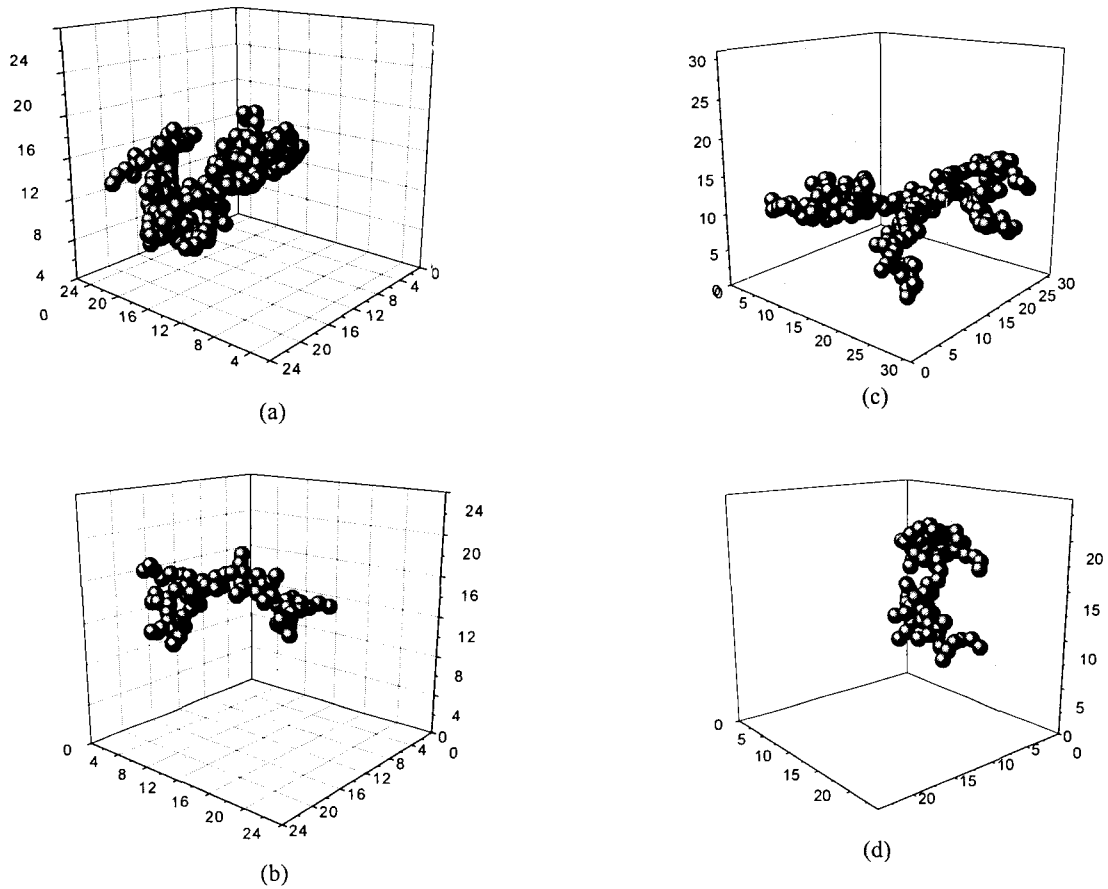


Fig. 1 Visualization of aggregates at $N_0/N(t)=99$ for three different charge location, (a) initially uncharged case, $n = 205$, (b) unipolar 0.3 centered charge, $n = 91$, (c) unipolar 0.3 nonconductor, $n = 233$, (d) unipolar 0.3 conductor, $n = 80$

응집체에 포함된 전하는 전기 전도도에 따라 분포가 결정된다. 이러한 과정을 반복하여 응집체 성장이 일어나게 된다. 대부분의 응집체 생성조건은 고온에서 이루어 지기 때문에 응집체를 이루고 있는 기본입자들의 결합이 단순한 반-데르-발스력에 의한 것이 아니라 국부적인 용합에 의한 강한 결합 (Hard Necking)을 형성하게 된다.⁽¹³⁾ 따라서 전체 계산과정에서 응집체의 형상은 변화하지 않는다고 가정하였다.

4. 결 과

4.1 응집체의 형상

SiO₂ 등 부도체 입자의 비저항은 약 $10^{10} \sim 10^{11} \Omega m$ 정도이고 유전 상수는 대체로 10 이하이며 또한 진공의 유전율은 $8.85 \times 10^{-12} C^2/(Nm^2)$ 이기 때문에⁽¹⁴⁾ 전하 이완 시간은 약 100 초 정도에 해당

다. 본 계산에서 응집 특성 시간은 τ_i 이 0.12 에 해당하는 값으로서 실제 2.75×10^9 초가 된다. 이 경우 입자는 완전 부도체로 가정할 수 있다. 한편 은(Ag)의 비저항은 $1.62 \times 10^{-8} \Omega m$ 정도의 값을 갖는다.⁽¹⁴⁾ 이와 같이 비저항이 아주 낮은 금속 물질의 경우 전하 이완 시간은 약 10^{-20} 초 정도가 되어 본 계산과 같은 응집 특성 시간을 갖는 경우 완전 도체로 볼 수 있다.

Fig. 1(a)는 중성 입자의 응집과정을 통해 생성된 응집체의 대표적인 형상이다. 이 응집체는 205 개의 기본입자로 구성되어 있는데, 한 변이 $31 d_0$ 인 입방체 내부에 존재하는 500 개의 기본입자가 응집과정을 통해 5 개의 응집체로 성장했을 때 얻어진 것이다. 이 응집체의 구조는 대단히 성긴 구조를 갖고 있는데, 기존의 많은 연구자들^(3,6,15,16)에 의해 보고된 응집체의 구조와 유사하다. 한편 Fig. 1(b), 1(c), 1(d)은 각각 전하가 응집체 중심에 놓여 있는 경우, 부도체로서 전하가 기본입자 위에 고

정된 경우, 그리고 도체로서 전하가 내부 전기에너지를 최소화 하는 위치에 분포하는 경우의 응집체 구조를 나타낸 것이다. 이 응집체는 각각 91, 233, 80 개의 기본입자로 구성되어 있는데, 기본입자의 평균 하전량이 0.3 이며 Fig. 1(a)와 같은 조건에서 구해진 것이다. 그림에서 볼 수 있듯이 전하의 위치에 관계없이 입자가 단극으로 하전된 경우 응집체는 중성 입자인 Fig. 1(a)보다 더 성긴 구조를 갖는 것을 알 수 있다.

4.2 하전 응집체의 프랙탈 차원

응집체의 구조는 프랙탈 차원으로 정량화 된다. 프랙탈 차원은 식 (1)에서 보인 바와 같이 응집체를 이루고 있는 기본입자의 수와 응집체의 회전반경의 관계에서 구해진다. 기본적으로 최소한 두개의 응집체에 대하여 기본입자 수와 회전반경을 대수차트에 도시하면 그래프의 기울기로부터 응집체의 프랙탈 차원을 구할 수 있다. 본 연구에서는 통계적으로 안정된 값을 얻기 위하여 $N_0/N(t) = 99$ 가 되는 시간에서, 기본입자를 5 개 이상 포함한다수의 응집체로부터 평균 프랙탈 차원을 구하였다.

Table 1 은 응집체 내부의 전하 위치와 전하량에 따른 응집체의 프랙탈 차원을 나타낸 것이다. 이 표에서 기본입자가 전기적으로 중성인 경우, 프랙탈 차원은 $D_f = 1.76$ 으로서 Mountain 등⁽³⁾이 구한 $D_f = 1.7 - 1.9$, Meakin 과 Wasserman⁽¹⁶⁾의 $D_f = 1.75 \pm 0.05$, 그리고 Forrest 와 Witten⁽⁶⁾의 1.7-1.9 와 유사한 값을 보인다. 기본입자가 단극 하전된 경우, 프랙탈 차원은 하전량이 낮은 경우 중성입자의 프랙탈 차원과 큰 차이를 보이지 않지만, 하전량이 증가할수록 프랙탈 차원은 중성인 경우보다 더 작아지게 된다. 이러한 결과는 Fig. 1 에서 이미 정성적으로 확인하였다. 이것은 Meakin 과 Wasserman 의 연구 결과⁽¹⁶⁾와 차이를 보인다. 그들은 응집체가 전기적으로 대전된 경우, 응집현상을 두 응집체가 응집이 일어날 때 부착확률을 1 보다 낮은 값으로 균일하게 설정하였다. 그 결과 하전

Table 1 Fractal dimensions for various charge location; these data are obtained for $N_0/N(t) = 99$

Charge Location	UC 0.0	UC 0.2	UC 0.3
Centered Charges	1.761	1.641	1.537
Nonconductor	1.761	1.610	1.476
Conductor	1.761	1.694	1.360

응집체인 경우 응집체가 충분히 성장하면 중성 응집체의 프랙탈 차원에 접근한다고 하였다. 그러나 하전된 기본 입자의 응집에 의해 형성된 응집체인 경우, 전도체와 부도체를 막론하고, 응집체 내부의 전하는 구형 입자와 달리 응집체 외각어만 분포하는 것이 아니라 응집체 외각에서 상당히 떨어진 응집체 내부에도 다량이 존재하게 된다. 따라서 응집체를 이루고 있는 각각의 기본입자에 의해 발생하는 전기적 척력도 서로 달리 나타나며, 수치모사에 있어서 이와 같은 전하 분포를 고려하여야 할 것이라고 생각된다.

Fig. 2 는 전도체와 부도체 응집체의 내부 전하 분포를 나타내는 것으로서, 각각 5 개의 응집체에서 얻어진 것이다. 여기에서 가로 축은 응집체 중심으로부터 무차원 거리이고 세로 축은 해당거리에서 누적된 무차원 전하량이다. 그래프에서 알 수 있듯이, 두 경우 모두 응집체 외부에 상당한 양의 전하가 분포되어 있는 것을 볼 수 있다.

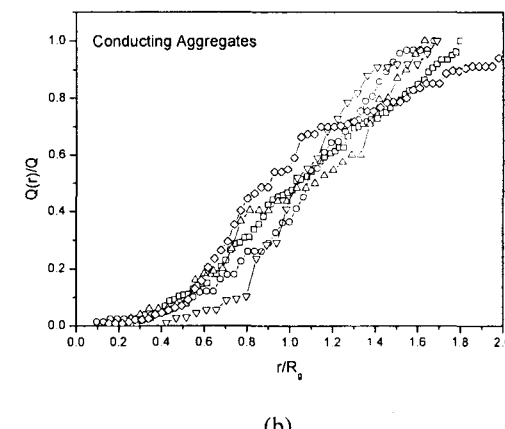
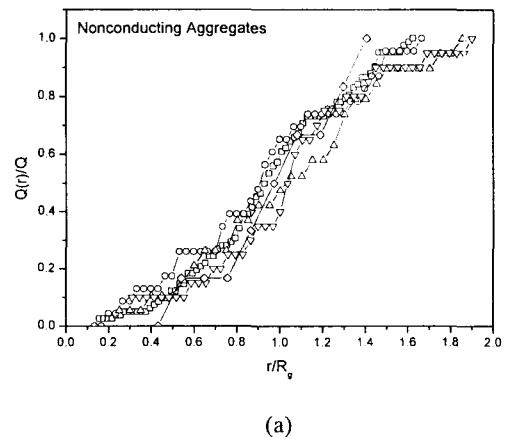


Fig. 2 Cumulative charge distribution from the center of (a) non-conducting aggregates and (b) conducting aggregates

이러한 외각 전하는 표적 응집체로 접근해 오는 응집체에 강한 전기적 척력을 작용시키게 되는데, 그 결과 응집체는 표적 응집체 내부로 침투하지 못하고 응집체 외각에 부착된다. 이 때 작용하는 전기적 척력은 응집체 중심에 전하가 집중된 경우보다 더 크게 되어 더 개방된 구조의 응집체를 형성하게 되는 것으로 생각된다.

한편, 입자의 전기 전도도에 따라 응집체의 형상을 비교하였다. 하전량이 0.3 인 경우, 프랙탈 차원은 응집체의 중심에 전하가 집중된 경우로 가정하여 구한 값과 비교하여 작아지는 것을 알 수 있었다. 그러나 하전량이 0.2 이하인 경우, 프랙탈 차원은 큰 차이가 없었다. 이러한 결과는 본 계산에서 취급하는 응집체의 크기가 수 십 nm로 아주 작기 때문에 하전량이 크지 않는 경우, 응집체에 인접한 부분의 전기장의 차이가 크지 않아서 응집체 충돌특성이 거의 변하지 않기 때문에 나타난 것으로 보인다.

4.3 응집체의 성장

입자의 전기적 특성에 따른 응집체의 성장이 Fig. 3 에 나타나 있다. Fig. 2 에서, 가로 축은 무자원 시간을 나타내고 세로 축은 수 농도 감소 비로서 평균 부피를 나타낸다. 이 그림에서, 응집 초기에는 부도체, 전도체, 그리고 전하가 응집체 중심에 있는 경우 모두, 성장 속도가 서로 비슷한 것을 알 수 있다. 그러나 응집의 후기에서는 전하가 응집체 내부에 분포하는 경우 (Conductor, Nonconductor)가 응집체 중심에 전하가 집중된 경우 (Centered Charge)보다 성장속도가 더 느린 것을 알 수 있다. 이것은 전하가 입자의 중심에 몰려 있는 경우보다 응집체 전체에 분포하고 있는 경우, 주변 하전 응집체에 더 큰 전기적 반발력을 작용하기 때문이라 생각되며, 그 자이는 응집체에 포함된 전하량이 클수록 크게 나타났다.

5. 결론

하전 입자의 응집 성장과정에서 입자의 전기적 물성의 효과를 알아보기 위하여 입자의 전하분포를 고려하여 수치계산을 수행하였고 입자의 응집 특성시간과 전하이완시간을 비교하여 입자를 전도체와 부도체로 구별하여 계산하였다. 입자가 부도체인 경우 전하는 초기 기본 입자 위에 고정되어 응집체는 더욱 성긴 구조를 갖게 되어 프랙탈 차원이 낮아졌다. 한편, 전하량이 0.3 으로 큰 경우,

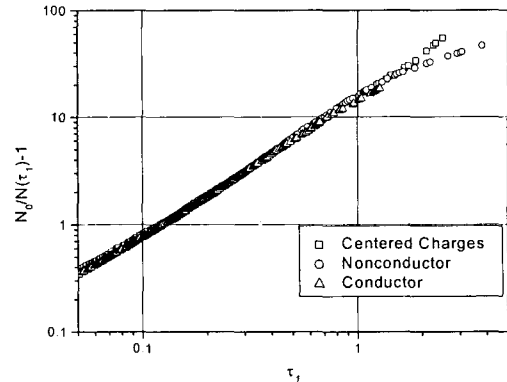


Fig. 3 Reduced number concentration, $N_0/N(t) - 1$, versus reduced time τ_r ($(t/\tau) \times$ volume fraction), for various charge location at unipolar 0.3

전하가 응집체 중심에 놓여 있다고 가정한 경우와 비교하면 전하가 응집체 전체에 분포되어 있는 경우 프랙탈 차원이 더 낮아지는 경향을 보였다. 응집의 초기와 중기에서 응집체의 성장 특성은 응집체 내부에 전하가 분산된 경우나 전하가 응집체 중심에 집중된 경우에 대하여 거의 유사한 특성을 보였다. 그러나 응집 후기로 갈수록 전하가 응집체에 분포하고 있는 경우, 집중된 경우보다 응집이 억제됨을 알 수 있었다.

후기

본 논문은 과학기술부의 국가지정 연구실 사업과 교육인적자원부의 두뇌한국 21 사업, 그리고 한국과학재단의 특정기초연구과제(no. 98-02000-03-01-3)의 재정지원을 받아 수행되었으며 이에 관계자 여러분께 감사 드립니다.

참고문헌

- (1) Kruijs, F. E., Fissan, H. and Peled, A., 1998, "Synthesis of Nanoparticles in the Gas Phase for Electronic, Optical and Magnetic Applications-a Review," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 29, pp. 511~535
- (2) Xiong, Y., Pratsinis, S. E. and Mastrangelo, S. V. R., 1992, "The Effect of Ionic Additives on Aerosol Coagulation," *J. Colloid Interface Sci.*, Vol. 153, pp. 106~117
- (3) Mountain, R. D., Mulholland, G. W. and Howard, B., 1986, "Simulation of Aerosol Agglomeration in the Free Molecular and Continuum Flow Regimes," *J.*

- Colloid Interface Sci.*, Vol. 114, pp. 67~81
- (4) Park, H., Kim, S., and Chang, H., 2001, "Brownian Dynamic Simulation for the Aggregation of Charged Particles", *J. Aerosol Sci.*, Vol. 32, pp. 1369~1388
- (5) Pratsinis, S. E., 1988, "Flame Aerosol Synthesis of Ceramic Powders," *Prog. Energy Combust. Sci.*, Vol. 24, pp. 197~219
- (6) Forrest, S. R. and Witten Jr, T. A., 1979, "Long-Range Correlations in Smoke-Particle Aggregates," *J. Phys. A. Math. Gen.*, Vol. 12, pp. L109~L117
- (7) Ermak, D. L. and Buckholz, H., 1980, "Numerical Integration of the Langevin Equation: Monte Carlo Simulation," *J. Comp. Phys.*, Vol. 35, pp. 169~182
- (8) Adachi, M., Kousaka, Y. and Okuyama, K., 1985, "Unipolar and Bipolar Diffusion Charging of Ultrafine Aerosol Particles," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 16, pp. 109~123
- (9) Böhm, J., 1982, *Electrostatic Precipitators*, Chap. 7, Elsevier Scientific Publishing Company
- (10) Brown, R. C. and Hemingway, M. A., 1995, "Electric Charge Distribution and Capacitance of Aggregates of Spherical Particles: Theory and Experimental Simulation," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 26, pp. 1197~1206
- (11) Keener, J. P., 1988, *Principles of Applied Mathematics - Transformation and Approximation*, Chap. 5, Addison-Wesley Publishing Company
- (12) Park, H., Kim, S. and Chang, H., 2002, "Numerical Simulation for the Non-Spherical Aggregation of Charged Particles," *Transactions of the KSME (B)*, Vol. 26, pp. 227~237
- (13) Friedlander, S. K., 2000, *Smoke, Dust, and Haze - Fundamentals of Aerosol Dynamics*, Chap. 12, Oxford University Press
- (14) Halliday, D., Resnick, R., and Walker, J., 1993, *Fundamentals of Physics (4th edition)*, Chap. 28, John Wiley & Sons. Inc., Singapore
- (15) Hurd, A. J. and Flower, W. L., 1988, "In Situ Growth and Structure of Fractal Silica Aggregates in a Flame," *J. Colloid Interface Sci.*, Vol. 122, pp. 178~192
- (16) Meakin, P. and Wasserman, Z. R., 1984, "Some Universality Properties Associated with Cluster-Cluster Aggregation Model," *Phys. Lett.*, Vol. 103A, pp. 337~341