

3개 입자측정시스템별 디젤 극미세입자의 수량분포 특성 비교

이진욱^{*1)} · 김홍석²⁾ · 조규백¹⁾ · 정용일²⁾

한국기계연구원 친환경엔진연구센터¹⁾ · 한국기계연구원 무·저공해자동차사업단²⁾

Analysis of Diesel Nano-particle Number Distribution Characteristics for Three Different Particle Measurement Systems

Jinwook Lee^{*1)} · Hong Suk Kim²⁾ · Gyubaek Cho¹⁾ · Youngil Jeong²⁾

¹⁾Engine R&D Center, Korea Institute of Machinery and Materials, 171 Jang-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-343, Korea

²⁾Center for Environmentally Friendly Vehicle, Korea Institute of Machinery and Materials, 171 Jang-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-343, Korea

(Received 30 April 2007 / Accepted 8 June 2007)

Abstract : In recent years, the particle number emissions rather than particulate mass emissions in automotive engine have become the subject of controversial discussions. Recent results from the health effects studies imply that it is possible that particulate mass does not properly correlated with the variety of health effects attributed to diesel exhaust. So, the concern is instead now focusing on nano-sized particles emitted from I. C. engine. This study has been performed for the better understanding about the engine nano-particle for 3-measurement systems with different measuring principle. Firstly, EEPS is a newly introduced instrument for size distribution measurement of engine exhaust particles. It can measure nano-particles with an adequate resolution and in real time. In this study, the characteristics of EEPS were compared with ELPI and SMPS. As a research results, EEPS showed a same effect of engine load on the size distribution with ELPI and SMPS. But the quantitative results of EEPS were more similar to SMPS than ELPI, because the EEPS and SMPS use a same principle for classifying particles by size. The capability for transient measurement of EEPS was equivalent to that of ELPI.

Key words : Particulate matter(입자상물질), Size distribution(입경 크기 분포), ELPI(Electrical Low Pressure Impactors), SMPS(Scanning Mobility Particle Sizer), EEPS(Engine Exhaust Particle Sizer), Real time measurement(실시간 측정), Nano-particle(극미세입자)

Nomenclature

CPC : condensation particle counter
CVS : constant volume sampling
PM : particulate matter, g/kwh
PN : particle number, #/km

1. 서론

현재 디젤엔진에서 배출되는 입자상 물질의 계측은 필터질량법(gravimetric PM mass analysis)이 국제 표준인데, 전체 배출가스 유량을 대상으로 하는 CVS(constant volume sampling)법과 일부 배기가스 유량을 대상으로 하는 부분 샘플링(partial flow sampling)법이 있다.

특히 최근에는 기존 계측법(질량농도)의 고도화와 디젤엔진에서 배출되는 극미세입자 즉, 수 억분

*Corresponding author, E-mail: immanuel@kimm.re.kr

의 1미터 수준의 입자가 새로운 대기오염 물질로써 부각되고 있는 상황이다. 최근 발표된 연구들에 의하면 디젤 엔진에서 배출되는 입자상물질에 인체가 장기간 노출되면 폐암 발생률과 사망률이 증가하는 것으로 알려져 있다. 이에 따라 세계 각국의 환경 보건 당국에서는 극미세입자(nano-particle)를 포함하는 디젤 입자상물질을 발암 물질로 분류하고 있는 실정이다. 특히 작은 크기의 입자일수록 인체 호흡기에 깊이 침투하여 인체에 미치는 영향이 크다는 연구 결과에 따라 자동차 배출가스 규제는 종전의 PM 중량 규제 뿐만 아니라 입자 개수(PN, Particle Number) 농도 규제가 추가될 것으로 예상된다.¹⁾ 일반적으로 디젤 엔진에서 발생하는 입자상 물질의 대부분은 연료의 탄화수소계의 불완전 연소에 기인하며, 일부는 엔진 유회유에서 발생된다. 대체적으로 직경 1 μm 이하의 작은 크기로, 유기물에 가까운 것들로서 유해한 성분 또한 많이 포함하고 있다.

Fig. 1에서 보듯이 디젤 입자의 입경 분포는 Bi-modal 특성을 갖는다.²⁾ 질량분포의 최대치는 Accumulation mode에서 나타나고, 개수 분포의 최대치는 Nuclei mode에서 나타나는 특징을 갖는다.

이밖에 1 μm 이상의 Coarse 모드에 존재하는 디젤 입자들이 있는데 이는 엔진 실린더의 벽, 배기관, 샘플링 관등에 부착되어 크기가 성장된 입자들로 알

려져 있다.

즉 질량 기준의 경우, 입자 직경이 약 0.1~0.25 μm 에 집중되어 있다. 그러나 입자 개수기준으로 보면 입자직경 50nm 이하 영역에 주로 분포하고 있다. 참고로 1995년부터 국내에서는 PM10 (직경10 μm 이하인 대기중 부유 입자상 물질)을 규제하고 있다.

디젤엔진의 입자상 물질은 고온(1,000~2,800K) 상태에서 국부적 연료 과다로 인해 긴 사슬모양의 연료분자가 열분해(thermal decomposition)를 일으켜 발생한다. 생성된 초기 미립자는 아세틸렌, 분자량이 큰 화합물과 PAH로 구성되어 있으며, 직경은 약 2nm이하의 초미립자이다.

이 입자는 엔진 연소실내 국부적 산소 부족(혼합기 유동형태가 주요 변수)과 연료성분, 연소온도, 확산속도, 반응 시간 등에 의한 탈수(dehydration) 및 분해 반응을 거치게 된다. 이를 통해 입자 표면성장, 응집, 영집 그리고 집합 등의 과정을 거쳐 입자상 물질을 형성하게 된다.

이러한 디젤 입자상물질의 입경 분포 측정에는 통상 ELPI(Electrical Low Pressure Impactors)와 SMPS(Scanning Mobility Particle Sizer)가 사용되고 있다.³⁻⁶⁾ ELPI는 다단 임팩터를 이용하여 크기 30 nm~10 μm 인 미세 입자의 크기 분포를 실시간으로 측정할 수 있는 장치이지만, 다단 임팩터의 단 수가

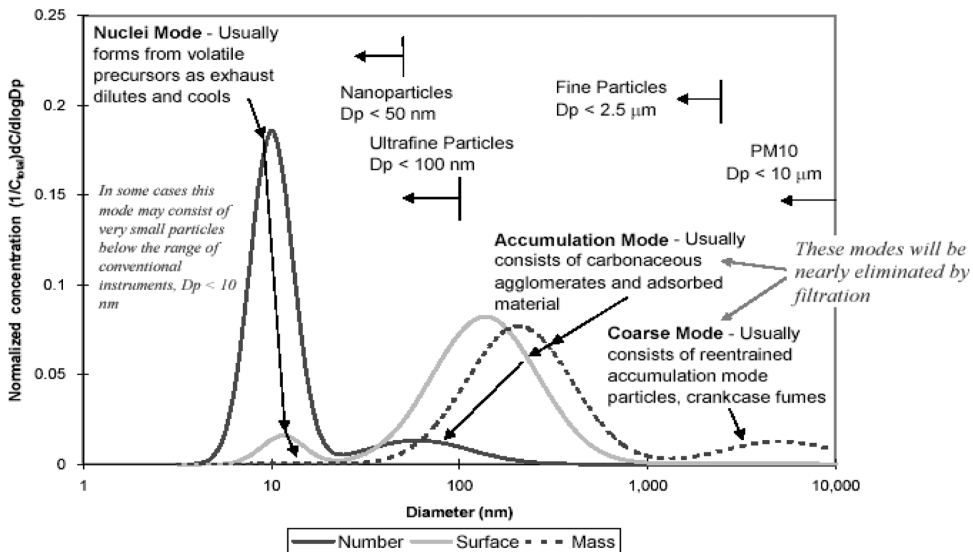


Fig. 1 Schematic of the bi-modal characteristics of engine PM emission²⁾

한정됨에 따른 측정 분해능의 한계, 임팩터의 오염 등이 단점으로 알려져 있다. SMPS는 입자의 전기적 이동(electrical mobility) 특성을 이용하여 크기 분포를 획득하므로 분해능이 우수하지만 응답시간이 1~7분 정도이기 때문에 천이 구간의 실험은 불가능하다는 단점이 있다. 최근에는 ELPI와 SMPS의 단점을 극복한 자동차 배출가스 전용 측정 장비들이 개발되고 있는데. EEPS(Engine Exhaust Particle Sizer), Tr-DMPS(Transient Differential Mobility Particle spectrometer) 등이 그 예이다.^{7,8)}

이와 같은 측정 장비들은 디젤 엔진 배출가스와 같은 고농도 입자 측정에는 직접 사용할 수 없으므로 적절한 희석장치의 사용이 필수적이다. 하지만 희석 방법 및 조건에 따라 디젤 입자상 물질의 입경 분포 측정 결과에 차이가 발생하기 때문에 디젤 엔진의 입자상 물질의 입경분포 측정을 위한 샘플링 방법과 분석 방법에 대한 표준이 필요한 실정이다.

본 연구에서는 최근에 상용화된 실시간 디젤 입자상 물질의 입경 분포 측정 장비인 EEPS의 특성을 현재 여러 연구자들에 의해 범용으로 사용 중인 ELPI 및 SMPS와 극미세입자 측정 특성을 비교 분석하였다.

2. 실험장치 및 방법

Table 1은 본 연구에서 엔진 배출 극미세입자를 계측하기 위해 사용된 EEPS와 ELPI 그리고 SMPS의 주요 제원을 나타낸 것이며, Fig. 2는 각 측정시스템의 실물 사진과 측정 원리를 개략적으로 나타낸 것인데, 3개 측정시스템별 주요 특징 및 원리는 다음과 같이 요약할 수 있다.

먼저, ELPI(Electrical Low Pressure Impactor) 시스템은 코로나 대전기, 다단 임팩터, 다채널 electrometer, 진공펌프와 외부컴퓨터로 구성된다.

Table 1 Specifications of instruments

	ELPI	SMPS	EEPS
Measuring range (nm)	30 ~1000	10-875	5.6-560
No. of channels	12	255	32
Sample flow (lpm)	10	0.3	10
Measuring concentration (1/cm ³)	8×10 ³ ~ 9 × 10 ⁶	10 ⁷	-
Scanning time	1	405	0.1

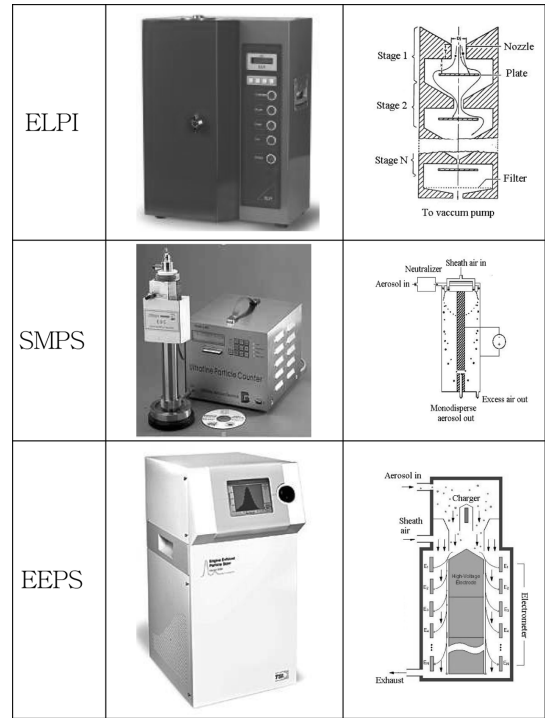


Fig. 2 Photos and schematic of particle measurement principle for 3 different instruments

코로나 대전기에서는 샘플링된 입자를 전기적으로 대전시키며, 12단으로 이루어진 다단 임팩터에서는 입자의 관성력을 이용하여 입자를 크기별로 분류한다.

각 임팩터에는 electrometer가 설치되어 있으며, electrometer에서는 입자들이 임팩터에 충돌할 때 얻어지는 전류를 측정하여 입자 개수 농도를 구한다.

이 때 각 임팩터 단은 상호간에 절연되어 있다. 상단에 위치하는 임팩터에서는 크기가 큰 입자들이 충돌되며, 하단에 위치하는 임팩터에서는 크기가 작은 입자들이 충돌하게 된다. 또한 ELPI를 구동시키는 진공 펌프가 필요하며, 이 진공펌프는 ELPI 내 유량을 10 l/min으로 일정하게 흡입하는 역할을 한다.

SMPS(Scanning Mobility Particle Sizer)는 DMA(Dynamic Mobility Analyzer)와 CPC(Condensation Particle Counter)로 구성된다. DMA에서는 입자에 작용하는 중력과 고전압으로 형성되는 전기장을 이용하여 입자를 크기별로 분류하고, CPC는 광학적인

방법을 이용하여 입자의 개수를 세는 역할을 한다.

본 실험에 사용된 SMPS의 측정 범위는 10~875 nm이며, 255개의 구간을 스캔하고, 전 입경 구간에 대한 측정시간은 405초 소요된다.

EEPS는 자동차용 입자상물질의 입경 분포를 측정할 목적으로 최근 몇 년전에 개발되었으며, 실시간 측정이 가능하다는 ELPI의 장점과 분해능이 우수하여 100 nm 이하의 작은 크기의 입자들도 효율적으로 측정할 수 있다는 SMPS의 장점을 동시에 갖춘 특징이 있다.

이 EEPS는 코로나 방전기에서 하전된 입자를 고압의 전기장을 이용하여 크기별로 분리하고, 32개의 electrometer에서 전류 값을 실시간으로 측정하여 입경 분포를 구한다.

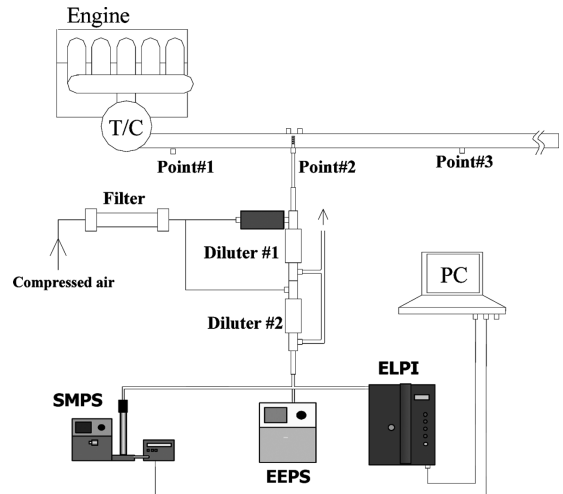
이상의 3가지 측정시스템에 대한 엔진 배출 극미세입자의 배출 특성을 비교하기 위해 본 연구에서는 Fig. 3과 같이 배기량 3000 cc급 간접분사식 소형 디젤 엔진, 측정장비, 희석 시스템으로 실험장치를 구성하였다.

측정 위치는 터보차저의 하류 140 cm 지점으로 하였으며, 배출가스를 희석하기 위하여 ejector type 희석장치를 2개 연결하여 사용하였다.

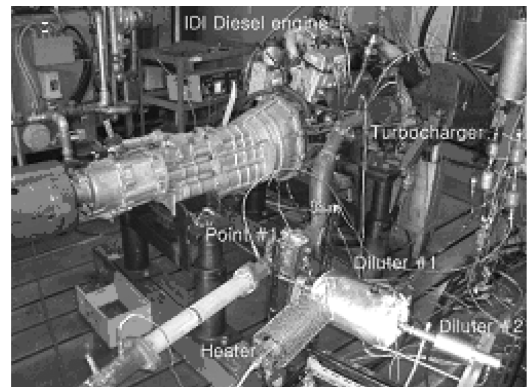
또한 배출가스 내에 존재하는 수분 및 휘발성 성분의 응축을 방지하기 위하여 희석장치 첫 단의 희석공기 온도를 200°C로 가열하여 공급하였으며, 두 번째 단의 희석장치는 상온의 희석공기를 공급하였다. 그리고 희석공기의 공급 압력은 2 bar로 일정하게 유지하였다.

3. 실험결과 및 고찰

Fig. 4는 3가지 측정시스템을 이용하여 엔진회전수를 1,600 rpm으로 일정하게 한 채, 엔진 부하 조건에 따른 디젤 입경 분포를 측정하여 상호 비교한 것이다. Fig. 4(a)는 EEPS로 얻은 측정 결과로써 엔진 부하가 증가할수록 입경 150 nm을 기준으로 이보다 작은 입자들의 개수 농도는 감소하고, 이보다 큰 입자들의 개수 농도는 증가하는 경향을 보임을 알 수 있었다. 고부하조건일수록 연소 특성이 악화되어 표면성장 및 응집등의 과정으로부터 크기가 성장된 soot가 많이 발생하기 때문에 150 nm 이상 큰 입자



(a) Schematics diagram



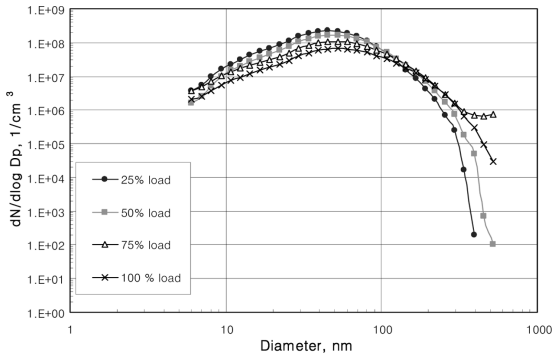
(b) Engine setup

Fig. 3 Experimental setup for engine nano-particle measurement

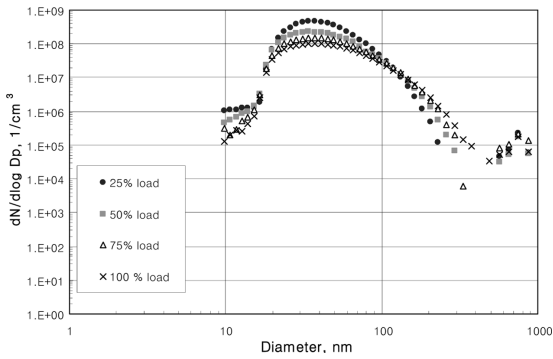
들의 개수 농도가 증가하는 것으로 판단된다. SMPS로 측정된 결과인 Fig. 4(b)와 ELPI로 측정된 결과인 Fig. 4(c)에서도 EEPS와 엔진 부하에 따른 유사한 특성을 보임을 알 수 있었다.

참고로 Hosoya 등⁹⁾이 8리터급 디젤엔진을 대상으로 한 실험 결과에서도 엔진부하가 증가함에 따라 큰 입자들의 개수 농도가 증가함을 확인할 수 있다. 하지만 이들의 실험에서는 작은 입자들의 개수 농도 감소 현상은 나타나지 않았다.

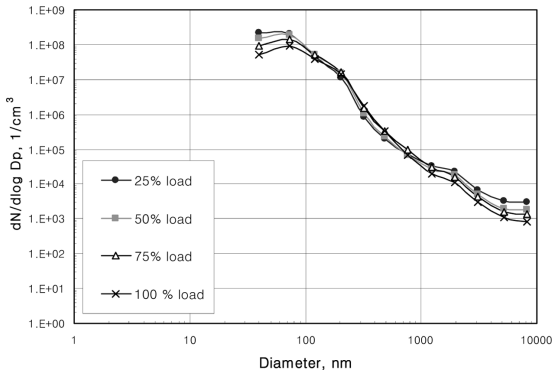
Fig. 5는 동일한 운전조건에서 EEPS로 측정된 입경 분포를 SMPS와 ELPI 측정된 결과와 비교한 것이다. Fig. 5(a)는 엔진회전수 1,600rpm 전부하 조건에서 측정된 결과이며, Fig. 5(b)는 엔진회전수 2,400rpm



(a) EEPS



(b) SMPS

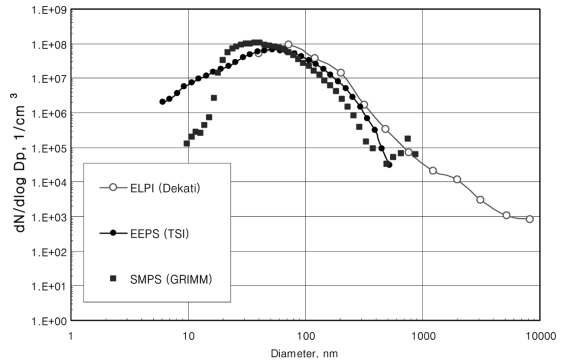


(c) ELPI

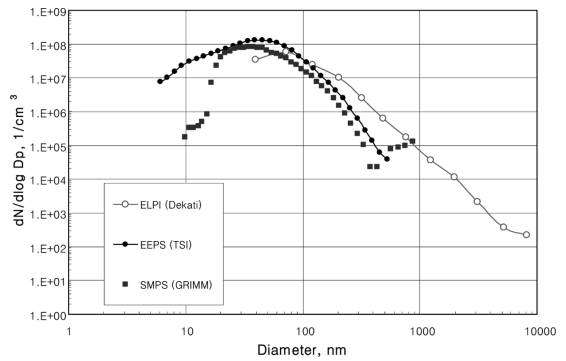
Fig. 4 Comparison of particle size distribution with respect to engine load conditions at engine speed 1600 rpm

전부하 조건에서 측정된 결과이다. EEPS를 비롯한 SMPS 및 ELPI의 측정 결과는 정성적으로는 상호 유사하였으나 정량적으로는 서로 차이가 존재함을 알 수 있었다.

특히 3개 측정시스템을 동시에 비교할 수 있는 입경 범위인 70~500 nm의 경우, EEPS의 측정 값은



(a) At full load condition (1,600 rpm)



(b) At full load condition (2,400 rpm)

Fig. 5 Comparison of particle size distributions measured by 3 different instruments with respect to engine speed

ELPI보다 SMPS의 측정 값과 유사한데 이는 EEPS와 SMPS가 입자를 크기별로 분류하는 동일한 원리를 사용하기 때문인 것으로 판단된다. 그러나 입경 10~70 nm인 작은 입자 영역에서는 EEPS와 SMPS 측정 결과 사이에도 차이가 크게 존재하는 것을 알 수 있다.

한편, 현재 차량의 배출가스 규제는 실제 운전 조건을 모사하는 운전 모드에서 이루어지므로 천이 구간에서의 입경 분포 측정은 중요한 의미를 갖는다. 본 연구에서는 EEPS를 이용하여 운전 조건이 바뀌는 천이 구간 동안에 입자의 개수 농도를 측정 및 특성을 해석하였다.

Fig. 6(a)는 5개의 구간으로 구성된 측정 모드를 나타낸 것인데, 각기 다른 엔진회전수와 토크를 가지며, 한 구간의 운전 시간은 30초이다. 이 때 EEPS는 1 초마다 한 번씩 데이터를 획득할 수 있도록 설정하였다. Fig. 6(b)는 이 측정 모드에서 EEPS로 측

3개 입자측정시스템별 디젤 극미세입자의 수량분포 특성 비교

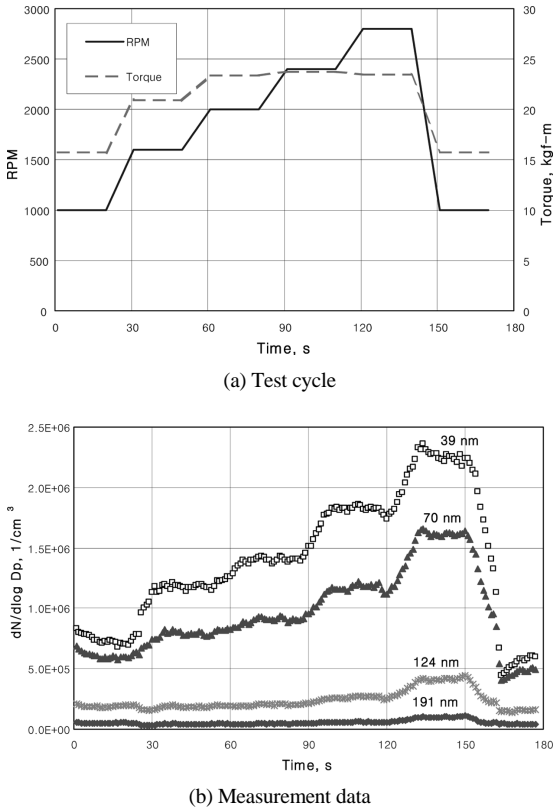


Fig. 6 Results of Transient measurement obtained by EEPS

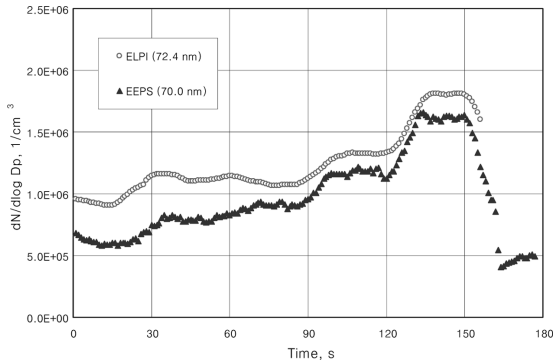


Fig. 7 Comparison of ELPI and EEPS in transient particle measurement

정된 시간에 따른 입자의 개수 농도 변화를 나타낸 것이다. 이로부터 입경 39~191 nm인 입자들의 개수 농도가 각 운전 모드에 따라 실시간으로 변화함을 알 수 있었다.

Fig. 7은 EEPS와 ELPI를 이용하여 천이 상태 측정 한 결과를 상호 비교해서 나타낸 것이다. 이때 입경

이 약 70 nm인 입자를 대상으로 실험을 수행하였다. EEPS와 마찬가지로 ELPI에서도 1초마다 한 번씩 데이터를 획득하였다. 비록 EEPS와 ELPI는 크기별로 입자를 분류하는 원리는 다르지만, ELPI는 입자가 충돌하는 각 임팩터의 전류 값을 임팩터에 연결된 electrometer를 이용하여 실시간으로 측정하며, EEPS는 입자를 전기장에 의해 분류하고 electrometer를 사용하여 32개 채널의 전류값을 실시간으로 측정하므로 두 장비의 실시간 측정 원리는 같다고 볼 수 있다. 그리고 Fig. 7의 측정 결과에서도 두 장비의 측정 값에는 차이를 보이지만, 천이구간 추종 능력은 유사하게 나타남을 알 수 있었다.

4. 결론

현행 디젤 입자상물질의 증량측정법을 적용하여, 관련 배기규제를 만족하는 경유승용차에서 배출되는 극미세입자 배출 특성에 대한 올바른 이해를 위해서는 보다 정확한 계측이 우선적으로 요구된다. 따라서 본 연구에서는 최근에 개발된 실시간 디젤 입자 입경 분포 측정시스템인 EEPS의 특성을 ELPI 및 SMPS와 비교하여 극미세입자 입경 분포 측정에 미치는 영향을 분석하고자 수행하였으며, 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

- 1) 엔진 부하(engine load)가 증가할수록 Nuclei mode내 극미세입자의 개수는 증가하는데, 이러한 엔진 부하 변화에 따른 디젤 입경 분포 변화는 3개 입자측정시스템(EEPS, ELPI와 SMPS)로 측정할 결과 세 측정시스템에서 모두 동일한 경향을 가짐을 알 수 있었다.
- 2) 엔진에서 배출되는 극미세입자의 수량분포에 있어서, 정량적으로 EEPS 측정값이 ELPI보다 입자를 크기별로 분류하는 측정원리를 사용하는 SMPS 측정 결과와 거의 유사함을 알 수 있었다.
- 3) 또한 실제 천이(transient) 운전 구간에서의 극미세입자 수량 배출농도를 분석한 결과, EEPS는 ELPI시스템과 유사한 실시간 측정(real-time measurement) 특성을 가짐을 알 수 있었다.

후 기

본 연구는 환경부(무·저공해자동차사업단)의 ECO-STAR Project내 공통기반기술과제(연구과제명: 극미세입자 평가관리 기반구축)의 연구비로 수행되었으며, 이에 깊은 감사를 드립니다.

References

- 1) A. Mayer, L. Hofer, J. Schlatter, H. Burtscher and J. Czerwinski, "Health Effects, Measurement and Filtration of Solid Particles Emitted from Diesel Engines," Technical Report of GRPE-PMP, pp.6-13, 2001.
- 2) D. B. Kittelson, "Engines and Nanoparticles: a Review," J. Aerosol Sci. Vol.29, No.5/6, pp.575-588, 1998.
- 3) H. S. Kim, S. S. Lee, G. B. Lee, N. W. Sung and Y. I. Jeong, "The Characteristics of ELPI and SMPS on the Measurement of Diesel Particles," Fall Conference Proceedings, Vol.I, KSAE, pp.285-291, 2003.
- 4) H. S. Kim, S. S. Lee, G. B. Lee, N. W. Sung and Y. I. Jeong, "The Effect of Dilution Method and Measuring Positions on the Measurement of PM Size Distribution in a Diesel Engine," Fall Conference Proceedings, Vol.I, KSAE, pp.297-301, 2003.
- 5) C. V. Gulijk, J. C. Marijnissen, M. Makkee and J. A. Moulijn, "The Choice of Instrument (ELPI and/or SMPS) for Diesel Soot Particulate Measurements," SAE 2003-01-0784, 2003.
- 6) J. Pagan, "Study of Particle Size Distributions Emitted by a Diesel Engine," SAE 1999-01-1141, 1999.
- 7) <http://www.tsi.com/particle/products/partsizesize/3090.htm>
- 8) <http://www.grimm-aerosol.de/>
- 9) M. Hosoya, S. Shundo and M. Shimoda, "The Study of Particle Number Reduction Using After-Treatment Systems for a Heavy-Duty Diesel Engine," SAE 2004-01-1423, 2004.