

염류용액 방전의 온도 측정에 관한 연구

(A Study on the Temperature Measurement Using Optical Emission in Saline Solution Discharge with Pin to Plate Electrodes)

김종균*

(Joong Kyun Kim)

Abstract

In this study, electrical and spectroscopic characteristics were investigated in the pin to plate discharge of 0.9% weight per unit volume saline solution. The positive and positive- and negative-going dc pulse with 5% duty ratio were applied to tungsten pin electrode. The more amount of discharge current flew in negative discharge. The temperature, which is considered as a local value in the vicinity of vapor of discharge, was about 3,000K which is much higher than the value recommended to be controlled. It can be suggested that not only the temperature of liquid but also the local temperature of vapor is monitored to investigate damages on tissue or cells in biological application.

Key Words : Saline Solution, Pin To Plate Discharge, Optical Emission Spectroscopy, OH Spectrum Band, Ulse Polarity

1. 서 론

방전 현상은 부도체인 매질에 고전압을 인가함으로써 도전성 성질을 띠게 하는 것으로 기체와 고체에서의 방전현상에 대해서는 비교적 잘 알려져 있다. 특히 기체 방전은 이온화 및 여기화를 통한 다양한 종을 발생시킬 수 있으므로 반도체 및 디스플레이 분야에서 식각, 증착, 표면처리 공정에 널리 활용되고 있으며 방

전의 제어를 통한 직접적으로 조명이나 디스플레이 소자로 활용하거나 탈질·탈황 등 환경 분야에서도 적용하고 있다[1-2]. 또한 고전압 절연을 위하여 고체에서의 방전 현상도 많은 연구가 진행되어 왔다.

액체에서의 방전은 의학 장비의 세정 또는 혈액응고 등에 활용되어 왔으나 최근 방전을 활용한 박테리아의 살균이나 바이오 분야에서 그 적용 가능성이 대두되어 그 특성에 관한 연구가 진행되고 있다[3]. 바이오 분야에 방전을 적용하기 위한 중요한 특성 중의 하나는 낮은 온도(43°C 이하)를 유지하는 것이다. 그렇지 않을 경우 생체 조직이나 세포의 손상이 발생하거나 치료 중 환자가 통증을 호소할 수 있다[4]. 그러나 일반적으로 쉽게 관찰할 수 있는 온도는 용액 전체의 평

* Main author : Seoul National University of Science and Technology, Department of Electrical and Information Engineering
Tel : 02-970-6404, Fax : 02-949-2654
E-mail : jkimm@seoultech.ac.kr
Received : 2015. 11. 5.
Accepted : 2015. 11. 26.

균값이며 방전 부분의 직접적인 온도는 아니다. 본 연구에서는 액체 내에서 형성된 방전의 온도를 광학적으로 측정의 가능성을 살펴보고 염류용액의 펄스 방전에 의해 생성되는 OH의 온도를 측정하였다.

2. 본 론

본 연구에서는 액체 방전의 특성을 파악하기 위하여 그림 1과 같은 장치를 구성하였다. 방전에 사용된 액체는 염류용액(saline solution/salt water, 0.9% weight per volume NaCl 용액)이며 용기와 반응하지 않도록 테플론 재질의 용기를 사용하였다. 염류용액의 방전을 위한 전극으로는 $500\mu\text{m}$ 직경의 텅스텐 침과 용기 아래면에 전극판을 설치하여 침대평판 방전이 발생되도록 하였다. 각 전극에는 단방향의 구형파를 인가하였는데 방전의 진행에 따라 염류용액의 상태 및 전극의 변화를 최소화하기 위하여 그림 2와 같이 10Hz의 낮은 주파수의 펄스를 인가하였고 매 측정 시 염류용액의 교체와 텅스텐 침 단면의 연마를 통하여 동일한 상태를 유지하고자 하였다.

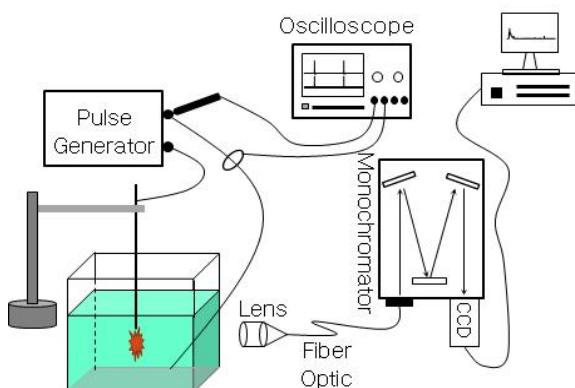


Fig. 1. Experiment schematics for observing electrical characteristics and optical emission spectroscopy of saline discharge

방전의 전기적인 특성은 전압과 전류탐침을 연결하여 오실로스코프로 측정하였으며 방전 중 발생하는 빛은 수광 렌즈로 집속하여 광섬유를 통하여 단색화장치(monochromator, Acton Spectropro SP2750, Princeton Instrument, 미국)를 통하여 분광하고 전하

결합소자(CCD / Charge Coupled Device, PIXIS, Princeton Instrument, 미국)를 통하여 스펙트럼을 얻었다.

2.1 염류용액 방전의 전기적 특성

염류용액의 방전을 형성하기 위하여 용기 하면의 면전극을 기준으로 하여 5% 듀티비(duty ratio)를 가지는 양과 음의 펄스를 텅스텐 침 전극에 인가하였다. 이 때 기포가 발생하는 전압과 발광을 시작하는 전압은 표 1과 같이 나타났다. 액체방전의 형성에 관해서는 크게 두 가지의 형태로 설명되고 있다.

Table 1. Characteristic discharge voltages with different polarity of pulse application

펄스 극성	양의 펄스	음의 펄스
기포 발생 전압 (V)	110	67
발광 시작 전압 (V)	290	200

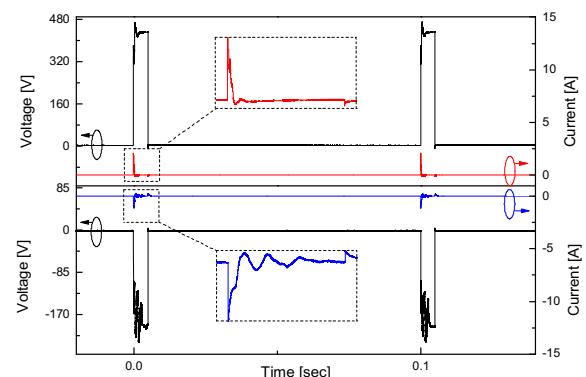


Fig. 2. Positive-going voltage and current waveforms, negative-going voltage and current waveforms (shown in upper part and lower part, respectively)

첫 번째는 강한 전기장에 의하여 기포가 발생하고 기포 내에서 강한 방전이 일어나는 2단계 방전이고, 두 번째는 방전과 동시에 근처 액체 분자의 해리 및 전자 충돌이 동시에 일어나는 형태이다. 전자의 경우

는 일반적으로 비교적 전계에서의 액체 방전의 형태로 생각할 수 있으며 후자의 경우 매우 강한 전계의 방전 형태로 이해할 수 있다[5,10].

또한 침 전극에 음의 펄스를 인가한 경우 상대적으로 낮은 전압에서 방전이 형성되는 것은 텅스텐 전극의 이차전자 방출 계수를 통하여 이해할 수 있다. 텅스텐 재료에서 전자 입사에 의한 이차전자 방출 계수는 입사 전자의 에너지에 의존하는 것을 고려하더라도 0.5~1 정도로 보고되고 있으며, 이온 입사에 의한 이차전자 방출계수는 2~4 정도로 알려져 있다[6-7]. 이차전자 방출을 고려한 DC 조건에서의 방전 개시 전압은 상수 A, B와 이차전자 방출계수에 대하여 아래 식과 같이 주어지므로 텅스텐 침 전극에 이온이 입사되는 음의 펄스 인가 조건에서 낮아질 것은 쉽게 예측할 수 있다[8].

$$V_{\min} = \frac{\bar{e}B}{A} \ln\left(\frac{1}{\gamma} + 1\right) \quad (1)$$

그림 2의 전압과 전류 파형을 보면 양의 펄스와 음의 펄스를 인가하는 경우 모두, 펄스가 끝날 때 전압 인가 방향과 반대 방향으로 전류가 흐르는 것을 알 수 있는데 (확대된 점선 내의 삽도) 이는 방전 시스템의 부하가 용량성분에 의한 것이다. 극성이 다른 펄스가 인가되었을 때 흐르는 전류를 좀 더 자세히 살펴 보면 그림 3과 같다.

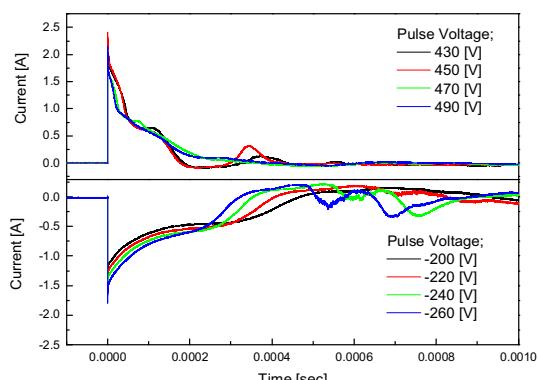


Fig. 3. Current waveforms with the change in positive-going (upper part) and negative-pulse (lower part) amplitude

본 연구에서는 방전 중의 광 방출 특성을 통하여 방전 영역의 온도를 유추하고자 하였으므로 인가전압은 의미 있는 스펙트럼이 관찰되는 전압으로부터 60V 높은 전압까지로 한정하였다. 양의 펄스가 인가되는 경우 방전 초기에 흐르는 변위 전류를 무시하더라도, 음의 펄스가 인가되는 경우에 비하여 높은 전압이 인가됨에도 불구하고 방전 전류의 양이 크게 나타나지 않았으며 방전이 지속되는 시간도 상대적으로 짧게 나타났다.

2.2 염류용액 방전의 광방출 특성

양의 펄스와 음의 펄스를 인가한 경우 광방출 특성을 비교하여 보면 양의 펄스가 인가된 경우에 보다 또렷한 Na 원자선(atomic spectral line)이 관찰되었는데 이는 보다 높은 전압을 인가하여 상대적으로 강한 전계 내에서 방전이 형성되었기 때문인 것으로 보인다. 이외에도 468.13nm 파장을 가지는 발머 계열의 Hβ선과 308nm를 중심으로 하는 OH 분자선(molecular lines)이 관찰되었다.

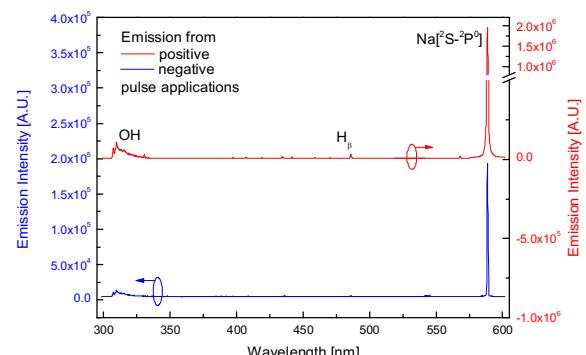


Fig. 4. Observed optical emission from positive-going (upper part) and negative-going (lower part) pulse discharge

본 연구에서는 관찰되는 스펙트럼 중 OH 분자선 대역을 이용하여 온도를 측정하고자 하였다. 분자선은 원자선에 비하여 많은 에너지 준위를 가지고 있는데 이를 준위 간의 에너지 차이에 의하여 다양한 파장의

빛이 방출된다. 이러한 에너지 준위 간의 천이 확률은 온도의 함수로 알려져 있어 에너지 천이의 결과로 나타나는 몇 가지 파장의 크기 비를 계산하여 분자의 온도를 파악할 수 있다. 또한 OH 분자선에 관해서는 이미 잘 알려져 있어 측정되는 온도가 정확하며, 방출된 빛을 활용하므로 시스템에 영향을 미치지 않고, OH 작용하는 부분의 미세한 온도를 파악할 수 있다. 이러한 온도 측정 방법은 기체 방전에서는 일반적이며 본 연구에서는 OH 분자가 풍부한 액체 방전 조건이므로 매우 실용적이며, 각 파장 사이의 발광 비율을 활용하므로 일부 시스템의 변화가 나타나는 경우에도 매우 신뢰할 수 있는 값을 얻을 수 있다. 그림 5는 양의 펄스를 인가한 경우와 음의 펄스를 인가한 경우에서 방전 전압을 변화시키며 측정한 308nm 근방의 방출 스펙트럼이다.

그림 5에서는 방전 전압을 증가시킴에 따라 얻어진 스펙트럼 값을 덧쌓고 (stacked) 동일한 스펙트럼 강도 구간에서 도시하여 비교가 용이하도록 하였다.

용액 매질에서의 방전에서는 방전 경로를 따라 기포를 관찰할 수 있는데, 기포 내부의 비유전율은 1로, 용액의 경우 80정도로 생각할 수 있다[5].

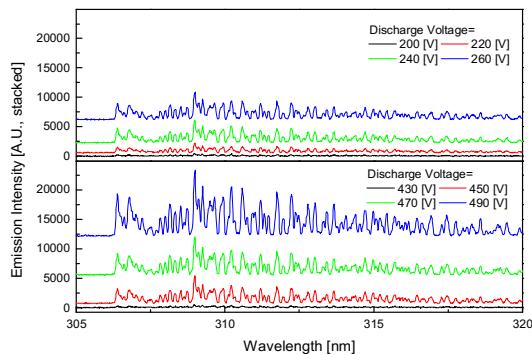


Fig. 5. OH spectrum from the discharge with positive-going (upper part) and negative-pulse (lower part) application

매질의 비유전율을 고려하면 전기장의 세기는 기포 영역에서 강하게 나타나며 전자의 중식과 분자의 여기 및 전리 또한 기포와 용액의 경계에서 활발히 나타날 것으로 예상할 수 있다. 그러므로 방전에 수반

되는 빛도 기포와 용액의 경계에서 주로 방출될 것으로 생각할 수 있어 수광된 빛으로부터 구해지는 온도는 강한 전기장에 의하여 생성된 기포 근방의 온도로 생각할 수 있다. 본 연구에서는 상용 프로그램인 LIBBASE에서 OH 분자의 방출 스펙트럼 [$A^2\Sigma, v=0 \rightarrow X^2\Pi, v'=0$]을 이용하여 온도를 구하였다. 참고로 사용된 프로그램에서 사용된 천이에 의한 아인슈타인 방출 계수는 다음의 표현식에 의하여 구하고 있다[9].

$$A_{\nu'J'}^{v'J} = \frac{g'_e}{g''_e} \frac{64\pi^4}{3h} \frac{S_J^J}{2J+1} p_{\nu'J'}^{\nu'J} (\nu_{\nu'J'}^{\nu'J})^3 \quad (2)$$

이 때 g_e 는 축퇴, S 는 Honl-London 계수, p 는 천이 계수, v 는 천이 주파수(cm^{-1})를 나타낸다.

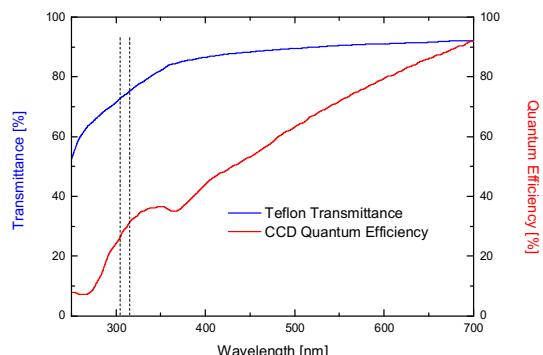


Fig. 6. The transmittance of reservoir for saline and quantum efficiency of CCD as a function of wavelength

최초에 얻어진 발광 스펙트럼은 염류 용액을 담는 용기를 투과하여 관찰되므로 파장에 따른 용기의 투과율을 고려하여야 하고, CCD 카메라의 파장에 따른 양자효율도 고려하여야 한다. 본 연구에서는 두 가지의 효과를 선형적으로 고려하여 방전으로부터 방출되는 스펙트럼을 유추하였다. 그림 6은 관찰된 스펙트럼으로부터 최초 방전으로 발생되는 스펙트럼을 얻기 위하여 사용된 용액 용기의 투과도와 전면 필터를 포함한 CCD의 양자효율로, 방전에 의해 최초 방출되는 스펙트럼에서 파장에 따른 발광의 상대비(ratio)는 두

그래프의 기울기를 역으로 고려하여 얻을 수 있다. 그림 7은 방전으로부터 얻어진 305~315nm 사이의 발광 스펙트럼과 LIBBASE를 이용해 모사한 스펙트럼을 비교한 것으로 매우 정확하게 모사되는 것을 확인할 수 있다.

그림 8은 방전에서 방출된 OH 스펙트럼을 이용하여 얻어진 방전의 온도 변화를 나타낸 것이다. 인가된 펄스의 극성에 따른 온도의 변화를 보면, 더 높은 전압이 인가되었음에도 불구하고 양의 펄스를 인가한 경우 음의 펄스가 인가된 경우에 비하여 낮은 온도를 보였으며 그 값은 3,000~3,500K 정도로 얻어졌다. 방전 전압의 증가에 대해서는 방전의 온도는 당연히 증가하는 경향을 보였다.

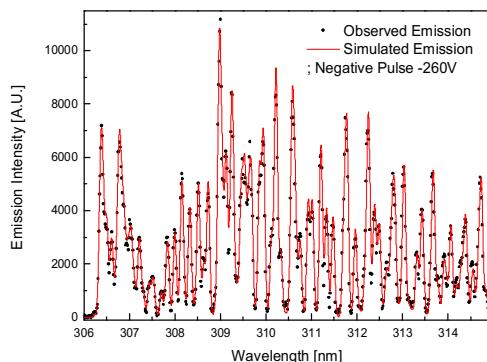


Fig. 7. Observed and simulated OH spectrum

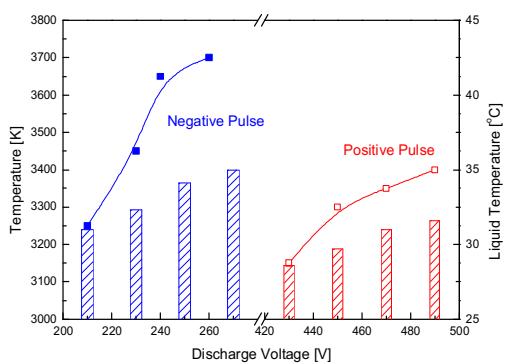


Fig. 8. Change in temperature in the discharge and liquid with positive-going and negative-pulse application

이러한 결과는 5분 방전 후 용액의 상단부에서 광섬유 센서를 이용하여 측정된 온도(그림 8의 막대 그래프)의 경향과 유사하며 바이오 분야의 응용에서 용액의 온도를 낮은 값으로 유지하더라도 방전에 의하여 형성된 기포 근방이 가지는 온도는 이보다 매우 높은 값이 됨을 알 수 있다. 방전에서 높은 온도가 유지되는 시간은 기포 근방의 방전이 유지되는 시간이므로 바이오 분야에 액체 방전을 적용하는 경우 생체 조직 등의 손상이 바로 일어나는 것은 아니지만 기포 근방의 높은 온도 효과도 고려는 필요할 것으로 생각된다.

3. 결 론

본 연구에서는 0.9% wv 염류용액에 5% 듀티비를 가지는 구형파를 인가한 침대평판 방전(pin to plate discharge)의 특성에 관하여 살펴보았다. 펄스 전압의 증가에 따라 기포가 발생하는 단계와 발광 형상이 관찰되는 단계를 가지는 전형적인 액체방전을 형성할 수 있었다. 기포는 발광 현상보다 낮은 전압에서 관찰되었으며 침 전극에 음의 펄스를 인가한 경우 양의 펄스를 인가하는 경우에 비하여 낮은 전압에서 기포와 발광이 관찰되었다. 전류 측정에서는 펄스 초기와 인가 후에 작은 변위전류가 관찰되었으며 음의 펄스를 인가한 경우 보다 큰 방전 전류가 흐르는 것을 알 수 있다. 이는 침 전극으로 사용된 텡스텐의 이차 전자 방출 계수가 이온 입사 시 더 큰 값을 가지므로 낮은 전압에서 방전의 형성이 가능하기 때문인 것으로 생각된다.

단색화 장치를 통하여 290~610nm 파장의 스펙트럼으로 분광한 결과 308nm 부근의 OH 분자선과 589.95nm의 Na 라인이 강하게 관찰되었으며 OH 분자선 분광 특성을 이용하여 방전의 온도를 유추하였다. 실험에서 형성된 방전 조건에서의 온도는 약 3,000K 정도이었으며 방전전압의 증가에 따라 증가하였다. 상대적으로 낮은 전압이 인가되더라도 침 전극에 음의 펄스가 인가된 경우 상대적으로 높은 온도를 나타내었다.

일반적으로 바이오 분야에 액체 방전을 활용하는 경우, 전체 용액을 포함한 시스템의 온도에 대한 특성을

관찰하고 있으나 세포나 생체 조직이 방전에 직접 노출되는 경우에는 방전에 의해 형성되는 반응종(radical) 등의 온도를 미시적으로 관찰함으로써 바이오 분야 응용에서 생체 조직 손상 등의 연구와 병행하여 사용될 수 있을 것으로 사료된다.

References

- [1] Bhum-Jae Shin, Sang-Sik Park, "Studies on High Speed Addressing Driving Scheme using the Priming Effect in Plasma Display Panel", Journal of KIIEE, vol. 23 no. 2, pp.45–52, 2009.
- [2] Chang-Seung Ha, Je-Hyun Lee, Eui-Jeong Son, Cha-Soo Park, Ho-Jun Lee, "Development of a Microplasma Source under Atmospheric Pressure using an External Ballast Capacitor", Journal of KIIEE, vol. 27 no. 6, pp.31–38, 2013.
- [3] Paul Y. Kim, Yoon-Sun Kim, Il Gyo Koo, Jae Chul Jung, Gon Jun Kim, Myeong Yeol Choi, Zengqi Yu, George J. Collins, "Bacterial Inactivation of Wound Infection in a Human Skin Model by Liquid-Phase Discharge Plasma", PLoS ONE, vol. 6 no. 8, pp.1–6, 2011.
- [4] Jeong-Hyun Seo, "Biological Application of Plasma", Information Display, vol. 15 no. 3, pp.18–25, 2014.
- [5] Sung Kil Kang, Myeong Yeol Choi, Il Gyo Koo, Paul Y. Kim, Yoonsun Kim, Gon Jun Kim, Abdel-Aleam H. Mohamed,1, George J. Collins,, and Jae Koo Lee, "Reactive hydroxyl radical–driven oral bacterial inactivation by radio frequency atmospheric plasma", APPLIED PHYSICS LETTERS, vol. 98, 143702, 2011.
- [6] E. Oyarzabal, A.B. Martin-Rojo, F.L. Tabarés, "Electron-induced secondary electron emission coefficient of lithium, tungsten and stainless steel surfaces exposed to low-pressure plasmas", Journal of Nuclear Materials, vol. 452, pp.37–40, 2014.
- [7] L. N. LAROE, "Secondary Electron Emission from a Clean Tungsten Surface Bombarded by various Positive Ions", in PROC. PHYS. SOC., vol. 81. no. 6, 1963.
- [8] Yuri P. Raizer, "Gas Discharge Physics", Springer, Berlin, 2001.
- [9] J. Luque and D.R. Crosley, "LIBBASE: Database and Spectral Simulation Program (Version 1.5)", SRI International Report MP 99-009, 1999.
- [10] Kanazawa. S, Kawano H, Watanabe S., Furuki T.,Akamine S, Ichiki R., Ohkubo T., Kocik M., Mizeraczyk J, Plasma Sources Sci Technol, vol. 20, 034010, 2011.

◇ 저자소개 ◇—————



김중균(金重均)

1970년 4월 20일 생. 1994년 서울대학교 전기공학과 졸업. 1996년 동대학원 전기 공학과 졸업(석사). 2001년 동 대학원 전기 · 컴퓨터공학부 졸업(박사). 2001~2004년 LG전자 PDP사업부 선임연구원. 2004~2008년 한경대학교 전기공학과 조교수. 2008~2014년 서울과학기술대학교 전기정보공학과 부교수. 2014년 ~현재 서울과학기술대학교 전기 정보공학과 교수.