

포집크기의 전기적 튜닝 기술을 이용한 나노크기의 공기중 입자 분류 및 수농도 응축

김용호[†], 권순명, 박동호, 황정호, 김용준

Classification and Condensation of Nano-sized Airborne Particles by Electrically Tuning Collection Size

Yong-Ho Kim, Soon-myoungh Kwon, Dongho Park, Jungho Hwang, and Yong-Jun Kim

Key Words : nano-sized airborne particles (나노크기의 공기중 입자), size classification (크기분류), condensation (수농도 응축), micro virtual impactor (마이크로 가상임팩터)

Abstract

It is not easy to detect nano-sized airborne particles (< 100 nm in diameter) in air. Therefore, the condensation of the nanoparticles alongside of the size-classification is needed for their detection. This paper proposes a hybrid (aerodynamic+electrical) particle classification and condensation device using a micro virtual impactor (μ VI). The μ VI can classify the nanoparticles according to their size and condense the number concentration of nanoparticles interested. Firstly, the classification efficiency of the μ VI was measured for the particles, polystyrene latex (PSL), ranging from 80 to 250 nm in diameter. Secondly, the nanoparticles, NaCl of 50 nm in diameter, were condensed by 4 times higher. In consequence, the output signal was amplified by 4 times (before condensation: 4 fA, after condensation: 16 fA). It is expected that the proposed device will facilitate the detection of nanoparticles.

기호설명

C_c = slip-correction factor (미끄럼보정계수)
 Stk_{50} = the Stk of a particle whose collection efficiency is 50% (스톡스 수)
 Re = Reynolds number (레이놀즈수)
 Q = flow rate (유량)
 U = velocity of flow (유속)
 W = injection nozzle width (주입노즐 너비)
 d_p = target cut-off diameter (목표 분류입경)
 t = thickness of the microchannel (마이크로채널 두께)
 λ = mean free path of air (공기의 평균자유행로)
 τ = relaxation time (완화시간)
 μ = dynamic viscosity of a particle (입자의 동적 점도)

ρ_p = particle density (입자 밀도)
 S = jet-to-plate distance (jet-to-plate 거리)
 η = collection efficiency (포집효율)

1. 서론

대기 중에는 다양한 크기를 갖는 입자상 물질, 미세 유기물, 가스상 물질이 포함되어 있다.^{1,4} 이러한 물질들의 크기는 수 나노미터에서부터 수십 마이크로미터까지 다양하다. 이중 입자상 물질은 그 공기역학적 직경 (aerodynamic diameter)에 따라 미세 입자(fine particle, 공기역학적 직경이 2.5 μ m 이하인 입자), 초미세입자(ultrafine particle, 200 nm 이하인 입자), 그리고 나노 입자(nano-sized particle, 50 nm 이하인 입자)로 분류된다. 이러한 입자상 물질은 기후 변화를 야기하며 인체에 유해한 것으로 알려져

[†] 연세대학교 기계공학부

E-mail : yonghokim@yonsei.ac.kr

TEL : (02)2123-2844 FAX : (02)312-2159

* 연세대학교 기계공학부

있다.⁵⁻⁷ 특히, 최근 연구에 의하면, 나노입자의 유해성은 여타의 입자에 비해 더욱 크다고 알려져있다.⁸⁻¹⁵ 따라서 나노 입자의 수농도(number concentration)을 크기에 따라 모니터링 하는 것은 매우 중요하다. 이러한 나노입자의 모니터링을 위해서는 크기별 분류와 감지기술이 필수적이다. 이에, 관성 분류법 (inertial classification), 중력 침전법(gravitational sedimentation), 원심 분리법(centrifugation), 열 침강법(thermal precipitation) 등이 대기 중 입자의 크기별 분류에 사용되고 있다.¹⁶

이 중에서 가상 임팩터(virtual impactor, VI)는 높은 성능과 실시간 분류의 이점으로 입자의 크기별 분류에 널리 사용되고 있다.¹⁷⁻¹⁹ 가상임팩터의 입구로 유입된 다분산 입자는 분사 노즐(injection nozzle)이라 불리는 점점 좁아지는 유로를 통과하면서 가속된다 (Fig. 1). 90 도 직각으로 꺾이는 주 유동의 유량을 90 % 이상으로, 직선으로 진행하는 부 유동의 유량을 10 % 이하로 조절하면 관성이 큰 입자는 직진하여 부 유동부 (minor port)로 이동한다. 반면, 관성이 작은 입자는 대부분의 유동이 집중되는 90 도 꺾인 주 유동부 (major port)로 이동한다. 이러한 원리로 입자를 크기에 따라 분류한다. 가상 임팩터의 분류 입경(가상 임팩터에서의 포집 효율이 50 %인 입자의 공기 역학적 지름)은 분사 노즐의 단면적과 유량에 의해 결정된다.

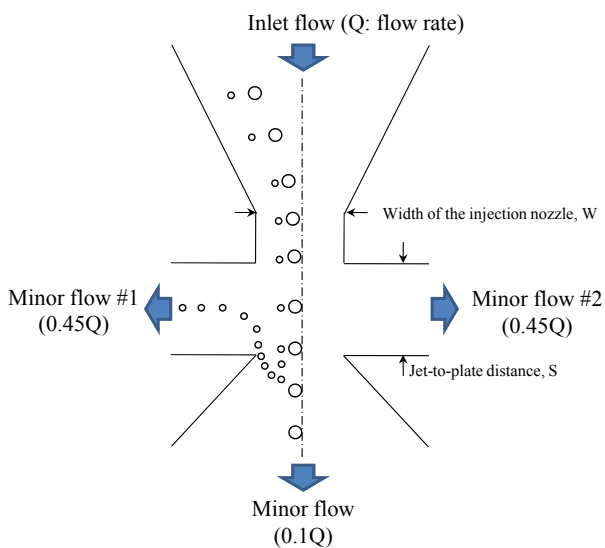


Figure 1: Schematic view of trajectories of particles in VIs.

이러한 기존의 가상임팩터는 다음과 같은 문제점이 있다. 첫째, 100 nm 이하의 입자를 분류하기 위해서는 입자를 음속이상으로 가속시켜야 한다.²⁰ 이는 입자의 파쇄를 야기한다. 또한, 이러한 가혹한 동작환경은 가상임팩터의 소형화 시 엄격한 패키징 기술을 요한다. 둘째, 분류입경이 가상임팩터의 기하학적 형상에 의해 결정된다. 따라서, 분류입경의 변화를 위해서는 새로운 설계 및 제작이 필수적이다.

크기별 분류 후, 감지를 위해서 현재 가장 널리 사용되는 기법은 입자를 전기적으로 하전시키고 포집하여 하전량을 측정하는 것이다. 그러나, 이러한 측정 방식은 입자의 크기가 작아짐에 따라 입자의 하전량이 급격히 줄어들어 100 nm 이하의 나노입자를 검출하는 데에는 한계가 있다.

이러한 기존의 가상임팩터의 한계를 극복하고 감지능을 향상하기 위해, 본 논문에서는 다음과 같은 특성을 갖는 마이크로 가상임팩터를 제안한다. 첫째, 나노입자를 전기적으로 가속시킨다. 이는 가혹한 동작환경을 제거하는 효과로 소형화에 장점을 지닌다. 둘째, 분류입경을 마이크로 가상임팩터에 집적된 전극에 전압을 가함으로써 전기적으로 튜닝한다. 이는 분류입경을 추가적인 설계 및 제작과정없이 변경시킬 수 있다. 마지막으로, 나노입자의 수농도를 증폭한다. 이는 나노입자가 동일한 하전량을 지니고 있더라도 상대적인 수농도 증폭으로 검출 신호의 증폭이 가능하다. 이를 통해, 나노입자의 검출을 용이하게 한다.

2. 설계 및 제작

2.1 설계

본 연구에서는 스톡스 수(Stk), 레이놀즈 수 (Re), 유량 (Q), 유속(U), 분사 노즐의 너비(W)를 고려하여 가상 임팩터를 설계하였다. 가상 임팩터는 다음의 과정과 같은 시행착오법 (trial-and-error)에 의해 설계하였다: 1) 분류 입경의 목표치(d_p)와 미세 유로의 두께(t), 스톡스 수(Stk) 결정; 2) 식 (1)에 의해 미끄럼 보정 계수(silp-correction factor, SCF, C_c) 계산; 3) 식 (2)를 이용하여 노즐의 너비 (W) 계산; 4) 레이놀즈 수(Re)가 1,000 미만임을 확인하여 미세 유로에서의 공기의 흐름이 층류임을 확인. 첫째, 입구로 유입되는 전체 유량을 0.30 l/min 으로 정하고, 노즐의 단면적에 의한 목표 분

류 입경을 160 nm 로 하였다. 이에 따라, 유입부, 주 유동 및 부유동의 유량은 각각 0.22, 0.20, 0.02 ℓ/min 으로 결정하였다. 미세유로의 두께는 150 μm 로 결정하였다. 둘째, Stk 와 SCF 가 고려되었다. Stk 는 노즐 너비의 절반($W/2$)에서의 입자의 정지거리 (stopping-distance)와 평균 유속(U)의 비로 표현된다(Eq. (1)).

$$Stk = \frac{\tau U}{W/2} = \frac{\rho_p d_p^2 U C_c}{9\mu W} \quad (1)$$

Eq. (1)에서 τ 는 이완 시간(relaxation-time)이며, ρ_p 는 입자의 밀도(1 g/cm^3)이고, d_p 는 입자의 직경이고, μ 는 입자의 동역학적 점성이다. $Stk_{50}(Stk_{50}$: 입자의 포집 효율이 50 %인 Stk 수)이 설계에 사용되었으며, Stk_{50} 은 직사각형 노즐에서 0.229 임이 선행 연구에서 밝혀진 바 있다.^{4,21}

SCF(C_c)는 Eq. (2)에 의하여 결정된다. λ 는 공기의 평균 자유 행로(mean-free-path)이며($0.066 \mu m$), SCF 는 입자의 직경이 1.0 μm 이하의 범위에서만 고려되며 그 밖의 범위에서는 1로 가정된다.

$$C_c = 1 + 1.257 \frac{2\lambda}{d_p} + 0.40 \frac{2\lambda}{d_p} \exp(-1.10 \frac{d_p}{2\lambda}) \quad (2)$$

셋째, 분사 노즐의 너비(W)는 Eq. (3)에 의하여 계산되었다.

$$W = \sqrt{\frac{\rho_p d_p^2 q C_c}{9\mu Stk_{50} t}} \quad (3)$$

마지막으로, 위의 과정을 통해 결정된 변수들의 값을 이용하여 Eq. (4)에 의해 계산된 레이놀즈 수 (Re)를 점검하였다. 이상적인 분류 효율 곡선을 얻기 위하여 미세 유로에서의 유동은 층류이어야 한다. 분사노즐과 충돌면과의 거리(S , jet-to-plate distance)는 분사 노즐의 너비의 최소 1.5 배 이상이어야 한다.

$$Re = \frac{4\rho W h U}{\mu(W+t)} \quad (4)$$

위의 설계 단계에 의하여 분사 노즐의 너비는 120 μm 로, 노즐-충돌면 거리는 180 μm 로 계산되었다. Table 1 에 설계의 주요 변수와 결과를 정리하였다.

2.2 제작

Fig. 2 는 제안하는 가상임팩터의 단면도이

며, Fig. 3 는 제작과정이다. 가상 임팩터 제작 첫 번째 단계는 1 μm 두께의 실리콘 산화막 위에 2 μm 두께의 알루미늄 전극을 형성하는 것이다. 미세 유로와 알루미늄 전극간의 절연을 위하여 3,000 \AA 두께의 실리콘 산화막을 전극 위에 증착하여 미세 패턴을 구현하였다. 마지막으로 200 μm 두께의 미세 유로를 SU-8 (SU-8 2100, MicroChem Corp.)을 이용하여 구현하였다. Fig. 4 에 공정이 완료된 가상 임팩터와 패키징된 가상 임팩터를 각각 도시하였다. 한 쌍의 polymethylmethacrylate (PMMA) 판을 이용하여 패키징을 하였으며, polydimethylsiloxane (PDMS, Sylgard 184, Dow Corning Corp.) 개스킷을 이용하여 강한 밀봉과 배관을 하였다.

Table 1 Design parameters and results of the proposed micro VI.

Description	Value
Designed cut-off diameter	160 nm
Flow rate (Inlet, major and minor flow)	0.22, 0.2, 0.02 ℓ/min
Width of the injection nozzle	120 μm
Jet-to-plate distance	180 μm
Microchannel thickness	150 μm

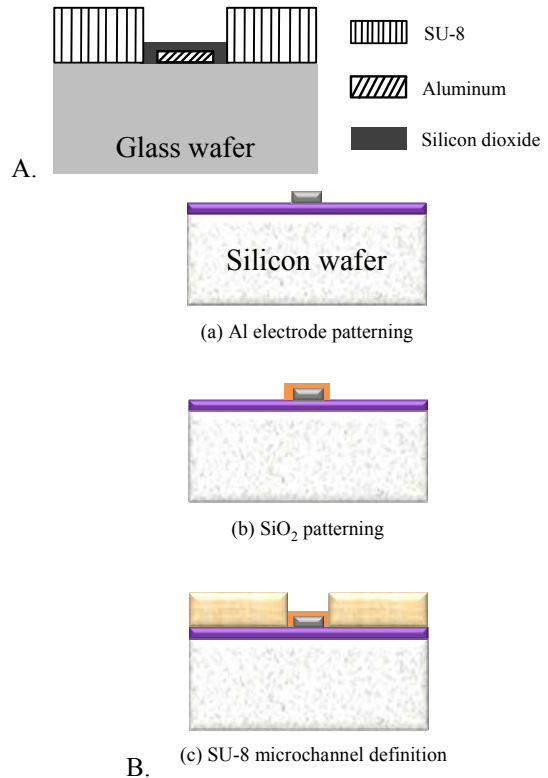


Fig. 2 A: Cross-sectional view, and B: Simplified fabrication sequence of the proposed micro VI.

3. 실험 및 결과

3.1 가상입팩터 특성 분석

Fig. 4(a)는 가상 입팩터만의 분류 특성을 알아보기 위한 실험장치의 모식도이다. 실험 장치는 크게 입자 발생부 (particle generator), 크기 분석부 (size analyzer) 및 분류부 (classifier)로 구성된다. 입자 발생부에서는 80 nm 에서 250 nm 의 크기 분포를 갖는 Polystyrene latex (PSL) 입자가 생성된다. 최초에 대기 중 공기가 공기 정화장치를 통과하여 건조, 압축 및 여과된 상태로 유입되면, 그 공기는 PSL 입자를 발생시키는 toner chamber 와 분무 장치로 공급된다. 이 때, 분무 장치에 담겨있던 500 ml 의 isopropyl alcohol (IPA) 와 0.5 ml 의 PSL 혼합물이 분사되며, PSL 에어로졸은 IPA 에 둘러싸인 상태로 분무된다. PSL 를 감싸고 있던 IPA 는 aerosol conditioner (TSI 3072, USA)를 통과하면서 제거된다. 이렇게 형성된 PSL 입자를 포함한 에어로졸은 크기 분석부로 공급된다. PSL 입자의 크기 분포는 differential mobility analyzer (DMA, TSI USA)를 이용하여 분석하였다. 분석된 PSL 입자는 분류부로 유입되어 가상입팩터에 의해 분류된다. 분류된 입자들의 크기 분포 분석은 다시 한번 scanning mobility particle sizer (SMPS, TSI 3936, USA)를 이용하여 이루어진다. 이때, 제작된 가상입팩터의 주 유동부의 유량은 질량유동측정기 (mass flow meter)와 진공 펌프에 의해 제어하며, 부유동부의 유량은 컴퓨터에 연결된 SMPS 에 의해 제어된다. 가상 입팩터의 입구 유량은 0.22 l/min, 주 유동은 0.20 l/min, 부 유동은 0.02 l/min 으로 제어되었다. Fig. 4(b)에 주 유동에서 포집된 입자의 크기별 포집 효율을 도시하였다.

포집 효율(η)은 Eq. (5)에 의하여 계산된다. N_{in} 과 N_{ma} 는 각각 입구와 주 유동에서 측정된 나노 입자의 개수 농도이다. 포집 효율 데이터는 Eq. (6)에 표현된 Boltzmann sigmoidal function (Sigma Plot, SPSS Inc.)를 이용하여 곡선 추정되었다. a_1 과 a_2 는 각각 회귀에 의한 계수이며, b 는 추정 폭, d_0 는 직경의 중간값이다.²¹ 실험에 의해 측정된 분류 입경은 190 nm 로 설계치인 160 nm 와는 약 19% 의 오차가 있었다.

$$\eta = \frac{N_{in} - N_{ma}}{N_{in}} \times 100 \quad (5)$$

$$\eta = \frac{a_1}{1 + e^{-\frac{d_p - d_0}{b}}} + a_2 \quad (6)$$

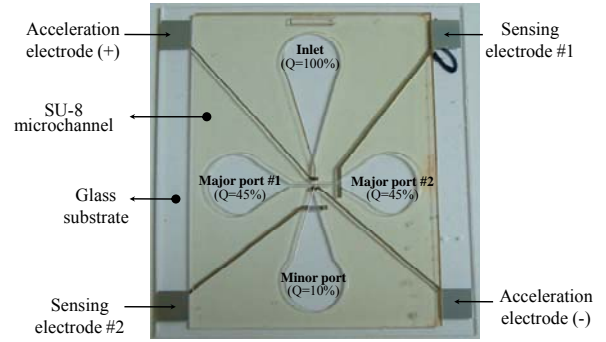


Fig. 3 Optical photograph of the fabricated micro VI.

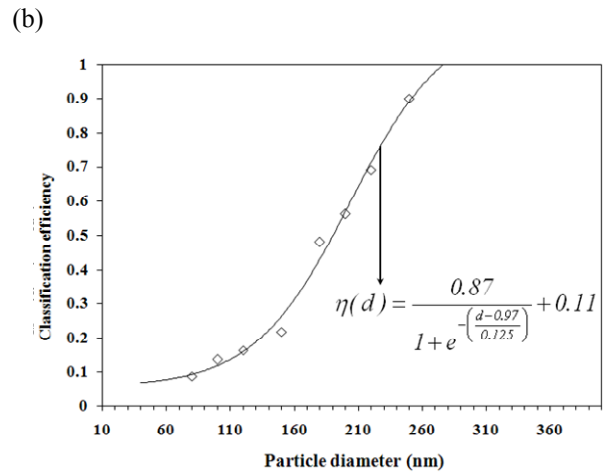
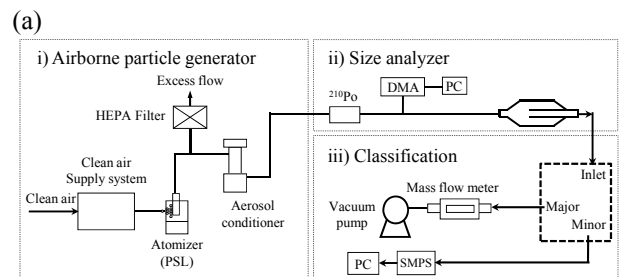


Fig. 4 (a) Experimental setup for examining cut-off characteristics of the micro VI, and (b) Measured collection efficiency without applying an electric potential. From the data, the cut-off diameter was calculated.

3.2 분류입경튜닝, 수농도 증폭 및 감지

Fig. 5(a)는 나노입자의 수농도 증폭 및 감지를 위한 실험순서도이다. 먼저, i)부에서 NaCl 입자를 생성하고 ii)부에서 50 nm 크기의 단분산 NaCl 입자를 추출 및 이들의 크기를 분석하였다. 마지막으로 iii)부에서 제안된 마이크로 가상입팩터를 이용하여 전극에 전압을 가하며 분류입경을 튜닝하고 감지전극을 통해 수농도 증폭에 따른 신호를 측정하였다. Fig. 5(b)는 전기적 연결도이며, Fig. 5(c)는 감지결과이다.

제안된 가상입력자의 분류입경은 190 nm 로 측정되었다. 즉, 190 nm 보다 작은 50 nm 크기의 NaCl 입자는 모두 주 유동부로 이동해야 한다. 하지만, 가속전극에 1.1kV 의 전압을 가함으로써 50 nm 크기의 NaCl 입자를 부 유동부에서 포집하였다. 이때, 부 유동부의 유량은 주 유동부의 10%이므로 NaCl 입자의 수농도는 이론적으로 10 배 증가하게 된다. Fig. 5(c)에서 보여지는 바와 같이, 가속전극에 전압을 가하지 않은 경우, 측정된 전류는 4 fA 였다. 그러나, 가속전극에 1.1 kV 를 가함으로써 측정전류가 4 배 증폭된 16 fA 로 나타났다. 이는 50 nm 크기의 NaCl 입자의 수농도가 4 배 증가했음을 의미한다.

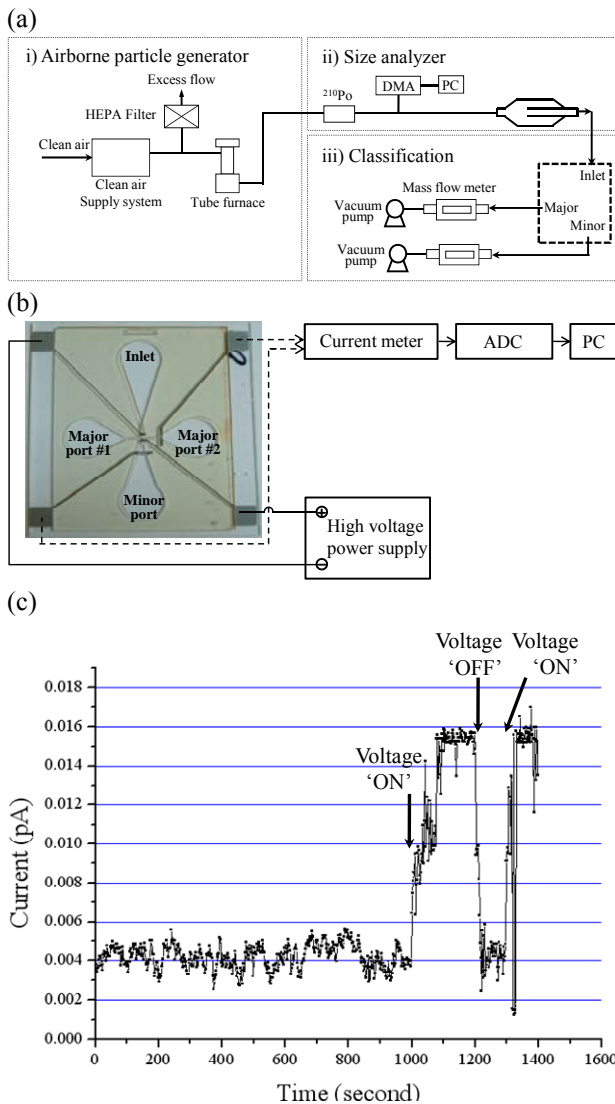


Fig. 5 (a) Experimental setup for the tuning, concentrating and detection characteristics, (b) detail flow of the tuning and detection experiment, (c) output signal amplification results by applying the electric potential to the accelerating electrodes.

이는 이론적 증가치의 40%에 해당하는 것으로 벽손실 (wall loss) 등에 의한 요인으로 60%의 손실이 발생한 것으로 추정된다.

4. 결론

본 연구에서는 100 nm 이하의 초미세 입자를 분류 및 검출하기 위한 마이크로 가상입력자를 제안하였다. 제안된 마이크로 가상입력자에 가속 및 감지 전극을 집적하여, 100 nm 이하의 초미세입자를 전기적으로 가속시킴으로써 기존의 가상입력자의 가혹한 작동환경을 완화하여 소형화에 유리한 환경을 조성하였다. 또한, 가속전극에 가하는 전압을 조절함으로써 분류입경을 튜닝할 수 있었으며 이를 통하여 나노입자의 수농도를 증폭하여 나노입자의 감지 신호를 증폭하였다. 본 연구를 통해 제안된 마이크로 가상입력자는 마이크로머시닝 기술을 이용하여 구현된다. 따라서, 인체에 매우 유해하다고 알려진 나노입자를 크기별로 분류하고 이를 감지할 수 있는 소형 및 이동형 (portable) 나노입자 감지기의 구현이 가능할 것으로 기대된다.

후 기

This research was supported by the MIC(Ministry of Information and Communication), Korea, under the ITRC(Information Technology Research Center) support program supervised by the IITA(Institute of Information Technology Assessment)" (IITA-2006-C1090-0603-0038).

참고문헌

- (1) D.B. Kittleson, "Engines and nanoparticles: a review," *J. Aerosol Sci.*, vol. 29, iss. 5-6, pp. 575-588, Jun.1998.
- (2) C.S. Cox and C.M. Wathes, "*Bioaerosols Handbook*," New York: Lewis Publishers: Boca Raton,1995.
- (3) B.N. Tam and C.M. Neumann, "A human health assessment of hazardous air pollutants in Portland, OR," *J. Environ. Manage.*, vol. 73, iss. 2, pp. 131-145, Nov. 2004.
- (4) W.C. Hinds, "*Aerosol Technology: Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particle*. 2nd ed.," New York: Wiley, 1999.
- (5) M.Z. Jacobson, "Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols," *Nature*, vol. 409, no. 6821, pp. 695-697,

- Feb. 2001.
- (6) J.H. Seinfeld and S.P. Pandis, "*Atmospheric chemistry and physics*," New York: Wiley, 1998.
 - (7) R. Wilson and J.D. Spengler, "*Particles in our air: concentration and health effects*," Cambridge: Harvard University Press, 1996.
 - (8) D.W. Dockery, C.A. Pope, J. D. Spengler, J.H. Ware, M.E. Fay, B.G. Ferris and F.E. Speizer, "An association between air pollution and mortality in six U.S. cities," *N. Engl. J. Med.*, vol. 329, no. 24, pp. 1753-1759, Dec. 1993.
 - (9) A.D. Kappos, P. Bruckmann, T. Eikmann, N. Englert, U. Heinrich, P. Hoop, E. Koch, G.H.M. Krause, W.G. Kreyling, K. Rauchfuss, P. Rombout, V. Schulz-Klemp, W.R. Thiel and H.-E. Wichmann, "Health effects of particles in ambient air," *Int. J. Hyg. Environ. Health*, vol. 207, iss. 4, pp. 399-407, 2004.
 - (10) N. Englert, "Fine particles and human health- a review of epidemiological studies," *Toxicol. Lett.*, vol. 149, iss. 1-3, pp. 235-242, Apr. 2004.
 - (11) J. Heinrich and R. Slama, "Fine particles, a major threat to children," *Int. J. Hyg. Environ. Health*, vol. 210, iss. 5, pp. 617-622, Oct. 2007.
 - (12) J. Pekkanen, K.L. Timonen, J. Ruuskanen, A. Reponen, and A. Mirmes, "Effects of ultrafine and fine particles in urban air on peak expiratory flow among children with asthmatic symptoms," *Environ. Res.*, vol. 74, iss. 1, pp. 24-33, 1997.
 - (13) F. Alessandrini, H. Schulz, S. Takenaka, B. Lentner, E. Karg, H. Bhrendt and T. Jakob, "Effects of ultrafine carbon particle inhalation on allergic inflammation of the lung," *J. Allergy Clin. Immunol.*, vol. 117, iss. 4, pp. 824-830, Apr. 2006.
 - (14) L.M. Neas, "Fine particulate matter and cardiovascular disease," *Fuel Process. Technol.*, vol. 65-66, pp. 55-67, Jun. 2000.
 - (15) K. Konaldson, X.Y. Li and W. MacNee, "Ultrafine (nanometer) particle mediated lung injury," *J. Aerosol Sci.*, vol. 29, iss. 5-6, pp.553-560, Jun. 1998.
 - (16) P.A. Baron and K. Willeke, "*Aerosol Measurement, 2nd ed.*," New York: Wiley, 2001.
 - (17) H.H. Lim, D. Park, J.Y. Maeng, J. Hwang and Y.J. Kim, "MEMS based integrated particle detection chip for real time environmental monitoring," in *Proc. The 19th IEEE MEMS*, 2006, pp. 62-65.
 - (18) J.Y. Maeng, D. Park, Y.H. Kim, J. Hwang and Y.J. Kim, "Micromachined cascade virtual impactor for aerodynamic size classification of airborne particles," in *Proc. The 20th IEEE MEMS*, 2007, pp. 619-622.
 - (19) Y.H. Kim, J.Y. Maeng, D. Park, J. Hwang and Y.J. Kim, "A micromachined cascade virtual impactor with a flow rate distributor for wide range airborne particle classification," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 4, 043512, Jul. 2007.
 - (20) P. Lee, D. Chen and D.Y.H. Pui, Experimental study of a Nanoparticle virtual impactor, *J. Nanoparticle Res.*, vol. 5, no. 3-4, pp. 269-280, Aug. 2003
 - (21) P. Demokritou, S.J. Lee and P. Koutrakis, "Development and Evaluation of a High Loading PM_{2.5} Speciation Sampler," *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 38, iss. 2, pp. 111-119, Feb. 2004