

# 나노입자의 측정과 포집

조 상 준  
(주) 신 성 이 엔 지  
기술 연구 소 / 부 소 장

## 1. 머리말

전자 산업, 식품 산업, 제약·제조 산업 등 첨단 산업 분야에서는 가스상 미립입자성 오염 물질에 의한 제품 표면 오염이 제품의 수율과 품질의 저하에 직접 관계되어 큰 문제로 되고 있다. 특히, 1 G bite 이상의 DRAM 생산을 목적으로 하는 반도체 산업의 작업 공간에서는, Sub-micrometer 크기의 입자뿐만 아니라 분자상 Cluster의 Nano 입자 (직경이 Nano-meter 크기의 초미립자), Ion까지 제거 대상이 되고 있으며, 그 제거법이 중요한 연구테마가 되고 있다. 지금까지는, 가스 중의 미립자 제거는 비교적 가격이 싸고, 제거 효율이 높은 섬유층 Filter가 광범위하게 사용되고 있으며 섬유층 여재의 포집 효율을 높이기 위하여 Filter를 구성하는 섬유의 미세화 등의 개량이 추진되어 오고 있다. 이들 섬유층 Filter로는 HEPA (High Efficiency Particulate Air) Filter, 또는 이것보다 가는 섬유를 사용한 ULPA (Ultra Low Penetration Air) Filter가 있다.

HEPA Filter에 의한 입자의 포집에서는 일반적으로 입자 직경이 약 0.1 ~ 0.2  $\mu\text{m}$  범위의 입자가 포집이 가장 잘 안되고, 그 이상의 크기에서는 차단과 관성, 그 이하에서는 브라운 확산에 의해 투과율이 저하 즉, 포집 효율이 높아진다.

종래의 여과 이론에 의하면, 섬유 표면에 도착된 입자는 전부 포집되어지는 것으로 되어 있지만, 입자 직경이 작게되어 분자 크기에 가까워지면, 입자의 열운동 속도가 커지고, 섬유의 표면에서 입자의 반발이 일어나기 때문에 투과율이 증대되는 것이 지적되어지고 있다. 반발이 일어나는 것은 입자의 열운동 속도와 Filter 섬유 표면의 입자 부착 에너지의 균형으로 결정되지만, 부착 에너지의 측정이 불가능하기 때문에 실제로는 Nano 입자를 이용 여과실험을 행할 필요가 있다. 또한, 입자 직경이 약 3 nm 이하에서는 브라운 확산을 지배하는 확산 계수가 통상 예측되고 있는 식 보다 작게되는 것도 보고되고 있다. 그러나 Nano 입자에 관해서는 Nano 입자의 발생과 측정이 쉽지 않기 때문

에 정확한 실험치와 이론과의 비교는 거의 보고되고있지 않다.

Nano 입자의 동력학적 거동에 관해서 최근 Cheng<sup>1-4)</sup> 과 Wang and Kasper<sup>5)</sup> 에 의해 이론적 연구가 보고되고 있다. 또한, Winklmayr<sup>6-7)</sup> 에 의해 Nano 입자에 대응할 수 있는 정전분급기(Differential Mobility Analyser ; DMA)가 개발되어, 이것을 응축핵 Counter(Condensation Nucleus Counter ; CNC)와 Faraday Cage Electrometer (FCE) 을 조합시킨 것에 의해 실험 정도(程度)의 비약적인 향상이 이루어 졌다.

본 보고서에서는 일반적으로 Nano 입자의 발생, 분급, 측정이 행해지는 표준 Nano 입자를 이용한 입자 포집 실험 시스템에 대해서 그 문제점을 간단히 서술한다. 다음에, 이전 Filter의 포집 이론과 비교하여 Nano 입자를 초미세 섬유층으로 된 여재에 포집시키는 경우에 대한 수치 해석을 소개한다. 또한, Nano 입자의 반발 현상을 Wang and

Kasper의 이론과 원관 벽면의 포집 효율 실험 결과에 의해서 언급한다. 더욱이, Nano 입자의 확산계수의 변화가 포집 효율에 미치는 영향에 대해서 검토를 하고, 반발 현상의 초정정 공간에서의 중요성을 고찰하고자 한다.

## 2. Nano 입자를 이용한 포집 효율의 측정 시스템

Filter의 포집 실험에는 자연 대기중의 Aerosol 입자를 이용하는 방법이 있지만, 입자 직경의 분포에 있어서, Nano 입자의 농도가 높지 않기 때문에 측정 정도 또한 양호하지 않다. 그러므로, 목적하는 입경을 갖는 고농도 표준 입자를 인공적으로 발생시켜 실험을 행하는 것이 필요하다.

HEPA Filter와 ULPA Filter의 포집성능을 측정하기 위한 시험 입자로서는, DOP나 Latex 입자가 종래 많이 사용되고 있다. 이것들의 입자는 수십 nm 이하로는 작아질 수

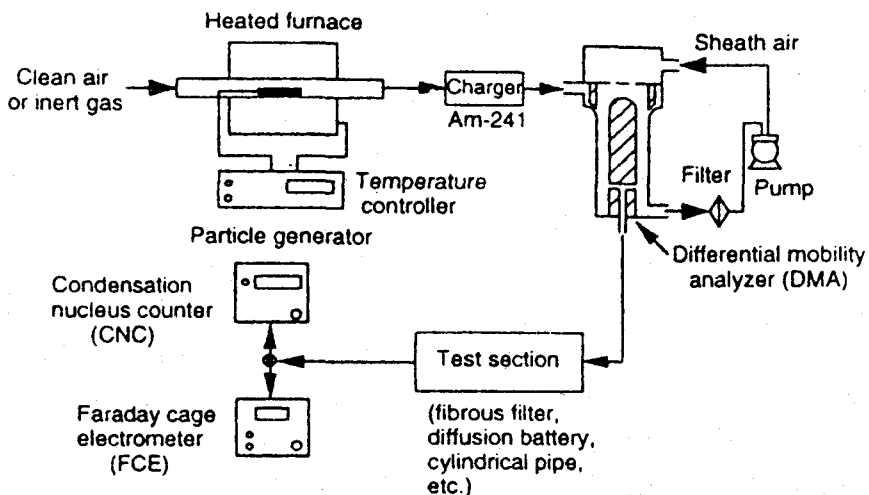


그림 1 Schematic diagram of experimental system for measuring collection efficiency of nano-particles.

없으므로 Nano 입자는 은, NaCl, ZnCl<sub>2</sub> 등의 고체 입자를 이용한 방법이 많이 사용되고 있다. 이 방법을 이용한 Nano 입자의 발생기 및 Nano 입자의 측정 시스템의 구성을 그림 1에 나타내었다. 발생기에서 발생한 입자는 다분산입자(多分散粒子)이기 때문에, 목적하는 입자 크기만을 갖는 단분산 입자를 얻기 위해서 정전분급기(靜電分級器)에 의해 분급되고, 포집효율측정을 위해서 테스트부로 이송된다. 테스트부 전후의 입자 농도는 CNC

와 FCE를 이용하여 측정되어 진다.

그림 2는 위의 시스템을 구성하는 장치를 포함한 입자 측정 장치의 측정 가능 범위를 나타내고 있다. 또한 Table 1은 입자 직경이 10 nm 이하의 Nano 입자에 대응할 수 있는 DMA, CNC, FCE의 원리와 문제점을 정리하였다. 아래에서 Nano 입자발생기, DMA, CNC, FCE의 각각에 대해서 간단히 설명한다.

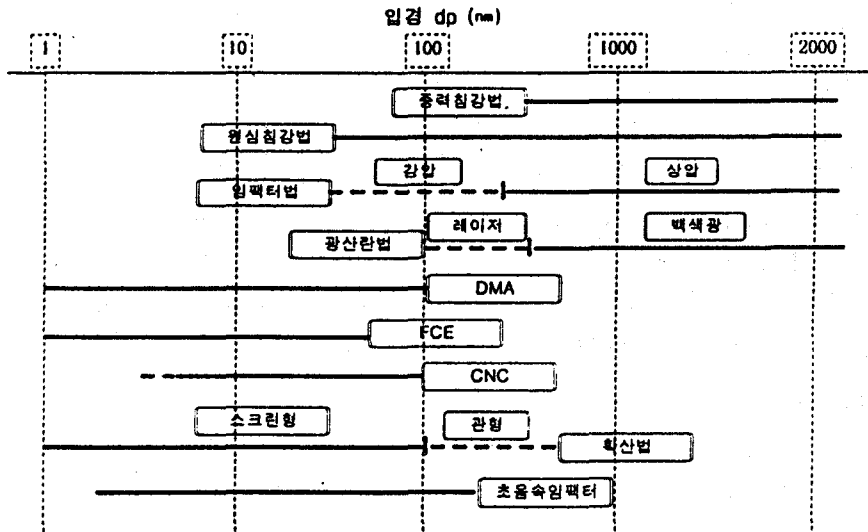


그림 2 Comparison of measurement limit in particle diameter among various measuring methods.

### 2.1 Nano 입자 발생기

기체 상태에서부터 초미립자의 발생법으로는, 기상화학적석출법(氣相化學的析出 Chemical Vapor Deposition : CVD)과 기상물리적 석출법(氣相物理的析出法 Physical Vapor Deposition : PVD)이 있다. CVD법에는 TiO<sub>2</sub> 등의 금속산화물 입자 등을 간단히 발생시킬 수 있지만, 여기에서 설명할 PVD 법은 은, NaCl, ZnCl<sub>2</sub> 등의 시료를 가열하여 증발시켜,

생성시킨 증기를 냉각, 응축시킨 것에 의해 고체의 Nano 입자를 발생시키는 방법이다. 실험실 규모에서 Nano 입자가 비교적 단순히 얻어지는 발생장치로서는, 적외선 Image 로(爐)와 온도 Controller, 유리제 증발관, 냉각장치를 조합한 것이 있다. 그림 3에 적외선 Image 로(爐)에 의한 Nano 입자 발생 장치의 개략도를 나타냈다. 적외선에 의해 시료의 온도를 상승시켜 증발시키고, Carrier

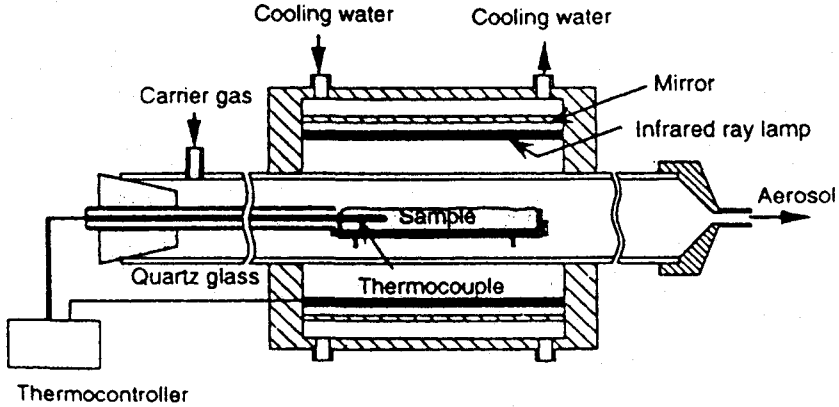


그림 3 Generator of nano-particles using infrared ray furnace(Otani et al., 1994).

gas에 의하여 냉각시킴으로서 입자가 발생한다. 이 장치에서는 시료의 재질(Ag, NaCl등)과 발생기 Jacket에 흐르는 냉각수의 온도, 시료의 증발 온도 Control에 의해 발생하는 입자의 크기가 1 ~ 10 nm의 범위에서 조절이 가능하다.

2.2 정전분급기 (靜電分級器 : DMA)

DMA는 당초 단분산 입자를 발생시키는 장치로서 개발되어졌지만, 현재는 다분산 Aerosol의 직경 분포를 측정하는 목적으로도 광범위하게 이용되고 있다. 입자 분급장치인 DMA의 자세한 설명은 Knutson 과 Whitby<sup>(6)</sup>에 의해 발표되었다. DMA에 의한 분급의 원리는, 대전(帶電)된 입자직경에 따른 정전영동속도(靜電泳動速度)의 차이를 이용하고 있다. 이 장치에서는 우선 분급하고자 하는 다분산 입자를 <sup>241</sup>Am 등의 방사성동위원소에 의하여 생성된 정부(正負) Ion과 혼합하여 대전(帶電)시킨다. 그림 4에 장치 본체의 개요가 표시되어 있다.

본체는 2중 원통 구조로 되어 있고 원통간의 환상(環狀)부는 상부로부터 청정 가스(Sheath 가스; 유량  $q_c$ )가, 밖의 원통 사이에는 대전된 Aerosol (유량  $q_a$ )이 도입되어 아래 방향으로 흐르게 된다. 중심 원통에는 직류 전압(V)을 인가(印加)하여, 원통과 반대 극성의 입자가 아래 방향으로 흐르면서 동시에 중심 방향으로 정전기력에 의해 이동된다. 그러므로 어떤 정전영동속도를 갖는 입자만이 중심 원통 하부에 설치된 Slit에 도달해서 장치 밖으로 배출된다. 내부의 기류 속도에 비교하여 입자의 정전영동속도와 유체로부터의 저항과의 균형을 고려한 것에 의해, DMA에서 분급된 입자의 크기는 이론적으로 식(1)과 같게 된다.

$$d_{pc} = \frac{2p e_p C_c L V}{3\mu (q_c + (q_a - q_s)/2) * \ln(R_2/R_1)} \quad (1)$$

여기에서,  $d_{pc}$  는 분급된 입자의 평균 직경,  $p$ 는 입자가 갖고 있는 전기 소량의 수,  $e_p$  는

단위전기소량,  $L$ 은 청정 기스와 Aerosol의 합류부로 부터 중심 원통부의 Slit 까지의 거리,  $q_c$ 는 분급된 Aerosol의 유량, 다시 말하면, Sampling 유량,  $R_2/R_1$ 은 외부 원통과 내부 원통의 반지름비이다. Cunningham 보정 계수  $C_c$ 는 입자 직경  $d_p$ 의 함수로서 다음 식으로 나타낼 수 있다.

$$C_c = 1 + \frac{\lambda}{d_p} [2.514 + 0.8 \exp(-0.55 \frac{d_p}{\lambda})] \quad (2)$$

여기에서,  $\lambda$ 는 기스의 평균 자유 행정으로, 대기압의 공기에서는 약 65 nm이다. 입자의

대전 상태는 통상 평균 대전량 분포로서 이미 알려져 있지만, 식(1)에 의해 분급 후의 입자 직경은 인가 전압  $V$ 를 조절하는 것으로 변화시킬 수 있다. 단, DMA에서는 청정 기류의 정류(整流) 및 청정 기스와 Aerosol의 원활한 합류가 대단히 중요하다. 이 합류에 의해 장치내의 기류에 난류가 발생하며, 입자는 난류에 의해 유로 내에 퍼져버리면 결과적으로 원하는 단분산 입자를 얻는 것은 불가능하다. Nano 입자의 정전 분급에 대한 검토는 현재까지도 불충분하기 때문에 DMA에 대해서는 현재에도 연구가 진행중이다.

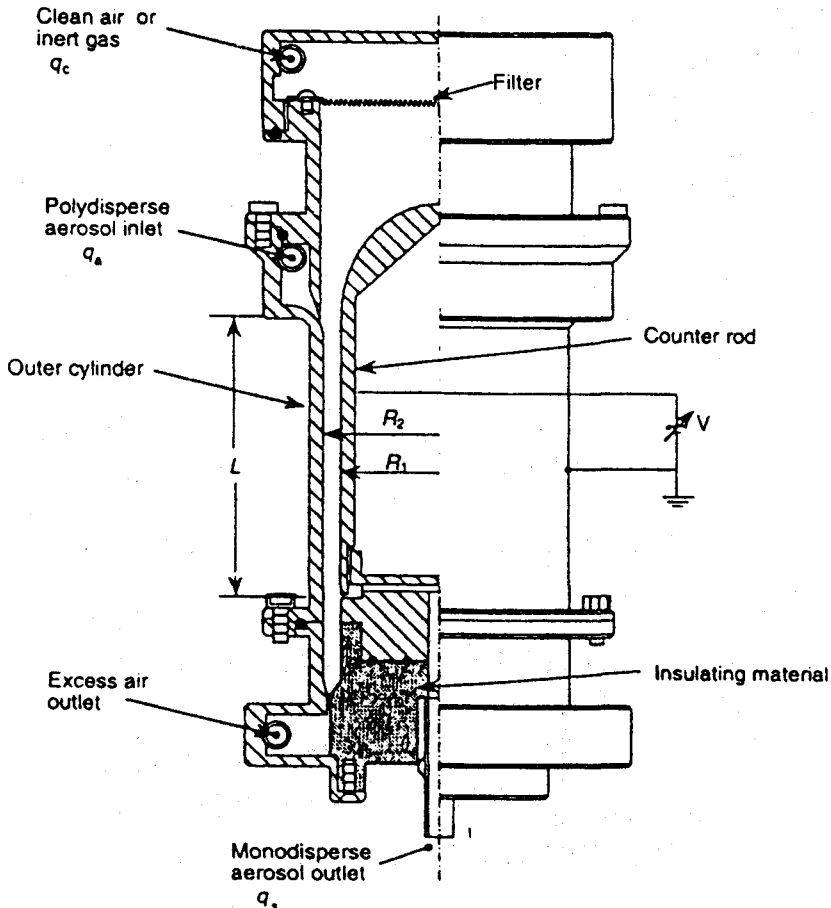


그림 4 Differential mobility analyzer for classifying nano-particles(Otani et al., 1994)

Scheibel은 DMA에 의한 분급의 정확도를 검토하기 위해서 확산법(디퓨존 밧테리) 및 투과형 전자 현미경(TEM)을 이용한 Cross Check을 행하여, 4~100 nm의 범위에서는 목적으로 하는 입자 직경의 입자가 정확하게 분급되는 것을 확인하였다. Cheng도 DMA 이론 분급 입자경과 전자 현미경에서 관찰한 입자경이 일치하는 것을 보고하고 있다.

한편 입경이 10 nm이하로 작아짐에 따라 특히, 시판되어 지고 있는 DMA(TSI Model 3071)에서는 입자의 브라운 확산에 의한 퍼짐과 유로 내벽면에서의 침착에 의해 분급 성능의 저하와 입자의 손실이 현저하게 된다. Kousaka는 이러한 브라운 확산의 영향을 2개의 DMA를 직렬로 연결한 실험과 계산으로 검토하였다. Winklmayr는 입자의 장치 내에 체류 시간을 짧게 하여 침착 손실을 억제하기 위해 청정 가스의 유량( $q_c$ )을 크게하고, Slit까지의 거리  $L$ 을 짧게 한 DMA(그림 4)를 개발하였다. 또 Ramamurthi는 입경이

약 3 nm 이하의 경우에는 Cunningham의 보정계수 중의 입경  $d_p$ 을 다음 식으로 나타내는 상당경을 이용할 필요가 있다고 보고하고 있다.

$$d_p^* = d_p [1 + 3 \exp(-2.2 \times 10^7 d_p)] \quad (d_p \text{ in cm}) \quad (3)$$

즉, 식(2) 중의  $d_p$ 에는 식(3)의  $d_p^*$ 를 대입할 필요가 있다. 이와 같이 예를 들어보면  $d_p=1$  nm의 입자에 대하여  $d_p^*$ 는 1.33 nm라고 식(1)에서는 분급경의 값에 오차가 발생한다.

### 2.3 응축핵 계수기 (CNC)

입자의 개수 농도는 단위체적당 입자수로서 표현되고, 그 측정은 광산란입자계수기(Optical Particle Counter; OPC)가 광범위하게 사용되고 있다. 그러나, 입자 직경이 약 0.1  $\mu\text{m}$  이하인 입자에 대해서는 Rayleigh 산

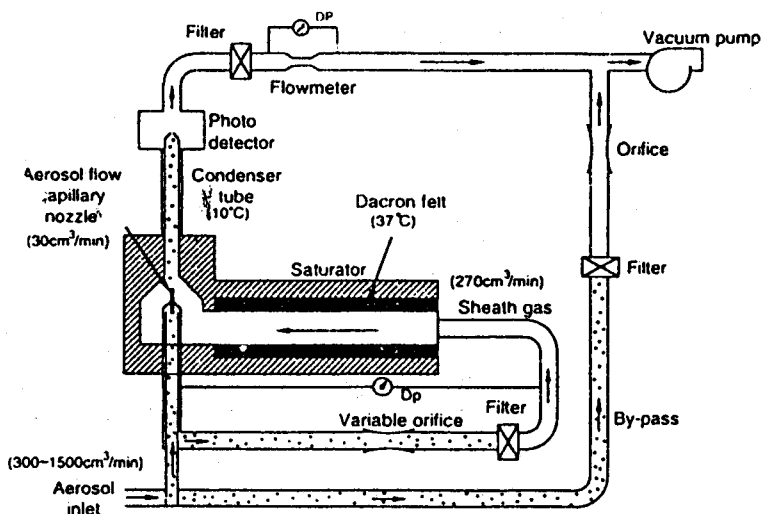


그림 5 Schematic diagram of condensation nucleus counter (TSI Model 3025, 3025A, 3027A).

란 이론으로부터 판명된 것과 같이 입자 직경의 6승에 반비례해서 산란광 강도가 급격히 약해진다. 상대적으로 외부 Noise의 영향이 커지기 때문에 입자를 직접 검출할 수가 없다. 따라서, 입자표면에 다른 이물질을 응축하여 입자를 성장시켜서 산란광을 측정하는 응축핵계수기가 통상 이용된다.

그림 5에 미국 TSI 사 제품 Model 3025를 예로서 CNC의 개략을 나타냈다. 미립자는 37℃로 가열되어진 관내의 알코올(n-Butanol) 증기 가운데로 통과시킨 후, 10℃로 보존된 냉각 응축관에 도달한다. 그곳에서 증기가 과포화되 되기 때문에 증기가 응축되어 입자표면에 부착됨으로서 입자직경이 증대된다. 산란광이 측정될 때까지 충분히 커진 입자에는 할로겐광이나 레이저광이 투사되어 입자의 산란광이 측정되고 개수 농도로 환산된다. 그렇지만, 입자 직경이 10 nm 이하인 입자는 응축 성장이 곤란하고, 또 장치 내에서의 브라운 확산에 의한 침착 손실이 크기 때문에 계수효율의 저하가 문제된다.

이 문제를 개량한 CNC 도 판매되고 있지만, 5 nm 이하의 입자의 계수는 어렵다. 또한, 이 CNC 단독으로는 입자 직경의 측정이 불가능하므로, 측정되는 입자를 DMA를 이용하여 분급하여 임의 크기 범위의 입자를 CNC에 도입하여 개수농도를 측정하는 조작을 반복하면 입자직경분포를 측정하는 것도 가능하게 된다.

#### 2.4 Faraday Cage Electrometer (FCE)

입자의 하전량(荷電量)을 측정하는 Faraday Cage Electrometer 법은 가장 간단하면서도 신뢰할 수 있는 방법으로 알려져 있다. 그림 6에 FCE의 개략을 표시한 것이지만, 상호 전기적으로 절연된 금속제인 이중관용기(Faraday case) 내측의 용기(필터)에 유입된 입자를 모두 필터에 의해서 포집한다. 여기서, 어-스되어 있는 외측의 용기와의 사이에 입자가 가지고 있는 총전하량에 비례한 전위차가 발생한다. 그곳에서, 내측의 용기를 Earth로 접속시킴으로서 대지로 흐르는 전류

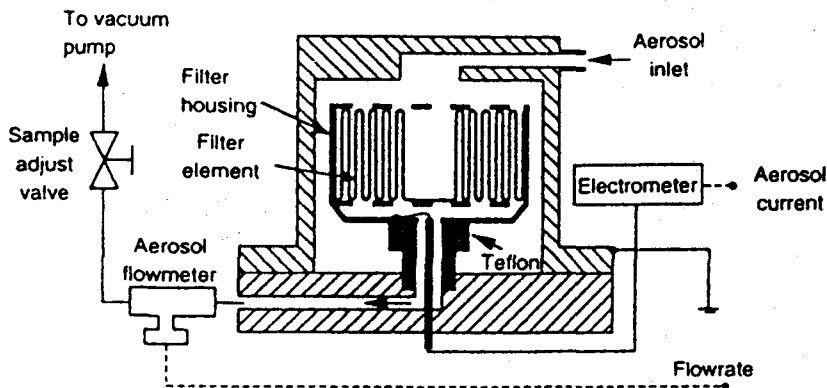


그림 6 Cross-sectional view of Faraday cage electrometer (TSI Model 3068)

를 Electrometer로서 측정한다. 개개 입자의 순간 전하의 양을 이미 알고있으므로 입자의 개수농도가 구해진다.

이 장치도 단독으로는 입자 직경을 측정할 수 없으므로, CNC와 마찬가지로 입자 직경 분포의 측정은 DMA와 조합하여 행한다. 또한, 입자의 농도가 낮고 전류치가 Electrometer의 측정 한계( $10^{-15}$  A) 근처에 있거나 혹은 그 이하로 되는 경우에는 측정 정도가 낮아진다. 측정될 입자는 대전되어 있으며, Nano 입자의 경우에는 입자 대전의 어려움이 문제가 된다.

### 3. Nano 입자의 포집에 관한 이론과 실험

원래 방사성의 입자상 물질 제거를 목적으로 개발되어진 유리 섬유층의 고성능 Air Filter는 여러 가지의 개량을 거쳐서 현재에는 첨단 전자·정밀산업의 작업공간 청정도를 향상시키기에 큰 역할을 담당하고있다. 1장에서 서술한 것처럼 Nano 입자를 제거할 필요성이 높아져 가고 있지만 입자 제거 장치로서는 지금도 섬유층 Filter가 주로 사용되어 질 것이다. 이 장에서는 먼저 Air Filter에 관한 지금까지의 이론에 대해서 서술하고, 다음에 모델 Filter에 대한 수치계산의 비교 검토를 통해 문제점을 검토하며 Nano 입자의 포집에 대해서 고찰하고자 한다.

#### 3.1 섬유층 Filter의 포집 이론

고성능 섬유층 Filter 내부의 공간율은 매우 높으므로 이웃한 섬유간의 거리를 평균하면 섬유 직경이 작을지라도 5배 이상이 된다. 이러한 섬유배열의 층내를 Aerosol이 흐

를 때 섬유 표면에서 어느 거리 내를 흐르고 있는 입자만이 섬유에 포집되고, 대부분은 하류 방향으로 흘러가 버린다. 그러나, 섬유층의 두께가 충분하기 때문에 Filter를 통과하기까지는 거의 대부분의 입자는 어딘가의 섬유에 포집되어 진다. 입자개수 농도는 기류의 흐름방향의 거리에 대해서 대수적으로 감소한다고 하는 다음의 Langmuir의 대수 투과율이 성립된다.

$$E = 1 - P = 1 - C_o/C_i \quad (4)$$

$$\ln(C_o/C_i) = -\frac{4}{\pi} * \frac{\alpha}{1-\alpha} * \frac{t}{d_f} * \eta_s \quad (5)$$

여기에서, E 는 Filter의 포집 효율, P 는 투과율,  $C_o$ ,  $C_i$ 는 각각 Filter의 입구와 출구에서의 입자 개수 농도,  $\alpha$  는 충전율, t 는 Filter의 두께,  $d_f$  는 섬유 직경,  $\eta_s$  는 단일 섬유 포집 효율이다. 섬유로부터 충분한 거리의 상류측에서 공기의 흐름에 수직한 섬유의 투영 면적을 고려하여 단일 섬유 포집 효율은 이 단면적을 통과하는 입자의 개수에 대해 섬유 표면에 포집된 입자의 개수비로써 정의되며, 입자 포집 효율의 평가 기준으로 사용되어 지고 있다.

실제의 Filter 내부의 구조에서는 섬유 직경이 불균일 하게 분포되어 있고, 또한 충전도 불균일하여 양자를 고려하여 보정을 행할 필요가 있다. 섬유 직경의 분포와 불균일한 충전율을 고려하여 식(5)을 보정한 결과는 다음 식과 같다.

$$\ln(C_o/C_i) = -\frac{4}{\pi} * \frac{\alpha}{1+\sigma} * \frac{t}{d_f} * \frac{\eta^f}{\delta} \quad (6)$$



여기서,  $\sigma$ 는 섬유 직경의 분산,  $\delta$ 은 충전의 불균일성에 관한 파라메터이다. 또한,  $\eta'$ 는 Fan Model Filter (균일하게 충전된 섬유층 Filter를 모델화 한, 직경과 간극이 일정하여 상호 평행한 섬유가 유체의 흐름에 수직으로 배열돼 있는 단일 섬유층을 Random하게 수 개 중첩시킨 이상적인 Filter)의 단일 섬유 포집 효율이 된다.

한편, 섬유의 미세화에 의해 섬유 직경과 공기 분자의 평균 자유 행정( $\lambda$ )의 비로 Kn 수(knudsen number  $2\lambda/d_f$ )가 0.25 보다 크면, 섬유 표면에서 가스의 미끄러짐이 생겨 섬유 주변의 흐름을 해석할 때에 연속체로서 경계조건이 성립되지 않는다. 여기서, Fan Model Filter에 대한 확산효과에 의한 단일 섬유 포집 효율은, 섬유 표면에서의 미끄러짐의 영향을 고려한 이론과 실험과의 비교검토에 의해 다음 식과 같이 수정되었다.<sup>13)</sup>

$$\eta^f = 2.7P_e^{-2/3} [1 + 0.39(k^f)^{-1/3} Pe^{-1/3} Kn] + 0.64Pe^{-1} + 2(k^f)^{-1} [2(1+R) \ln(1+R) - (1-R) + (1+R)^{-1} + 2\tau Kn(2+R) R(1+R)^{-1}] + \sim 1.24(k^f)^{-1/2} Pe^{-1/2} R^{2/3} \quad (7)$$

여기서,  $P_e (= d_f U / D)$ 는 Peclet number 이고,  $D$ 는 입자의 브라운 확산계수,  $U$ 는 유체 속도,  $R$ 은 입자 직경과 섬유 직경의 비로 나타나는 파라메터이다.  $k^f$ 는 유체역학 인자로서 다음 식으로 표현된다.

$$k^f = -0.5 \ln\left(\frac{\alpha}{1+\sigma}\right) - 0.52 + 0.64 \frac{\alpha}{1+\sigma} \quad (8)$$

그러므로, 식(6)~식(8)로부터 섬유층 Filter의 포집 효율이 예측 가능하다.

3.2. 브라운 확산에 의한 단일섬유포집효율  
 섬유층 필터에 입자가 포집되는 메커니즘 으로서는 거름효과, 관성, 중력, 차단, 확산 등이 있지만, 입경이 작은 것은 차단과 확산 이외의 영향은 작게 된다. 그러나 입경이 더 작아져, 섬유경의 1/10이하에서는 차단의 영향도 작아지게 된다. 따라서, Nano입자의 유체로부터 분리·포집기구로서는 브라운 확산이 지배적이다. 입자의 브라운 확산계수는 다음의 Stokes-Einstein의 식에서 구하면, 입경이 작아짐에 따라 커지게 된다.

$$D = \frac{CkT}{3\pi\mu d_p} \quad (9)$$

여기서  $k$ 는 Boltzmann 정수이다.

입자가 섬유표면에 포집되는 과정은 표면으로의 입자 수송과정과 표면에서의 부착과정에 의한다. 그러니까 단일 섬유포집효율  $\eta_s$ 는 충돌효율  $\eta_c$ (collision efficiency)와 부착효율  $\eta_a$ (adhesion efficiency)의 곱으로 표시된다.

$$\eta_s = \eta_c \cdot \eta_a \quad (10)$$

수  $\mu m$ 이하의 입자는 일반적으로 부착력이 강하기 때문에 일반적으로 부착효율이  $\eta_a = 1$ 라고 볼 수 있으며, 포집에서는 충돌효율만을 고려해 왔다. Lee와 Liu<sup>14)</sup>는 차단과 확산을 고려하여  $Pe \leq 30000$ 의 조건하에서 기체 흐름방향에 수직인 섬유에 대한  $\eta_c$ 에 대하여 다음의 식을 제안하고 있다.

$$\eta_c = 2.6 \left[ \frac{1-\alpha}{H} \right]^{1/3} Pe^{-2/3} + 0.6 \left[ \frac{1-\alpha}{H} \right] \frac{R^2}{1+R} \quad (11)$$

여기서,  $H$ 는 유체역학인자이다. 그러나

Nano입자를 HEPA 필터에서 포집하는 경우,  $Pe < 1$ 의 영역에서도 적용하는 것은 문제가 되지만, 현단계에서는 명확하지는 않다.

### 3.3. 모델필터에 대한 포집효율의 수치계산

실제의 섬유층 필터에서는 구조가 복잡하기 때문에, 단일섬유포집효율을 지배하는 인자를 밝히기는 곤란하다. 그러니까, 실제 필터의 구조를 모델화한 모델필터가 자주 사용되고 있다. 여기에서는, 섬유경과 섬유간격을 알고, 섬유가 공기 흐름에 대하여서 수직으로 배열되어 있는 지그재그 배열원주군 모델(staggered array cylinder model)을 사용하여, 낮은  $Pe$ 수 영역에서의 단일 섬유포집효율의 수치계산을 행한 Cho<sup>15)</sup>의 연구를 소개한다.

그림7은 같은 배열의 원주군에 대한 수치계산 모델과 경계조건을 표시한다. 이 모델

에서는 원주군(필터의 섬유층에 상응하는)을 표시한 사각형영역(ABCD)을 수치계산으로 했다. 유동을 2차원, 비압축성, 층류로 무차원화한 연속방정식, 운동량방정식을 풀고, 그 유동에 따른 다음의 입자 대류확산방정식을 해석하였다.

$$U^* \frac{\partial C^*}{\partial X^*} + V^* \frac{\partial C^*}{\partial Y^*} = \frac{1}{Pe} \left( \frac{\partial^2 C^*}{\partial X^{*2}} + \frac{\partial^2 C^*}{\partial Y^{*2}} \right) \quad (12)$$

위의 식에서는,  $Pe = dU/D$ 이다. 경계조건으로서는 섬유표면에 충돌했던 입자는 전부 포집되는 조건, 즉 부착효율  $\eta_a = 1$ 의 조건을 취하며, 구체적으로는 섬유표면에서의 입자 농도를 0으로하여 계산을 하였다. 수치계산에서는 유체의 유동해석을 목적으로 하는 범용 프로그램인 FIDAP(Fluid Dynamics Analysis Package; Fluid Dynamics International, Inc. (U. S. A))을 사용하였다.

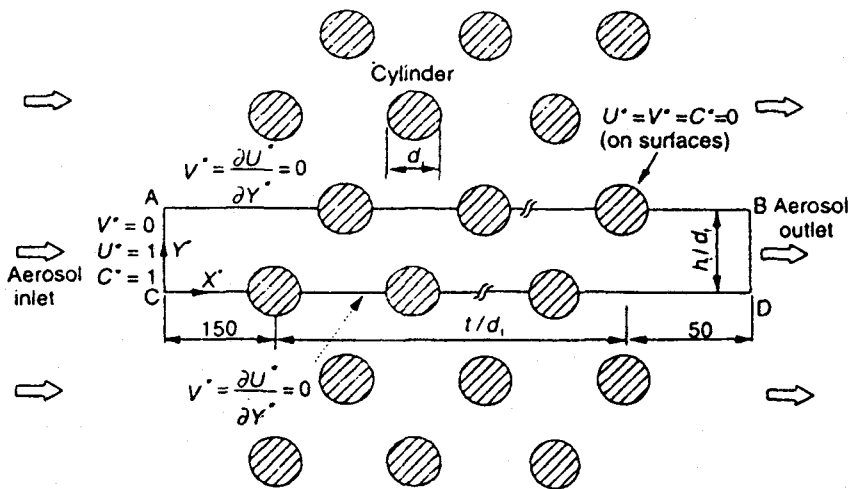


그림 7 Domain and boundary conditions for numerical calculation of collection efficiency of staggered array cylinder model(Cho et al., 1995).

그림 8은 충진율  $a$ 가 0.05( $h_c/d_f=2.8$ )인 경우에 있어서 수치계산으로부터 구한 단일섬유포집효율(점선)과 Eq.(11)(실선)과의 비교를 표시했다. 이 그림을 보면  $Pe > 1.0$ 의 경우 그래프의 경향은 Eq.(11)의 경향과 대체로 일치한다. 그러나,  $Pe < 1.0$ 에서는  $Pe$ 수가 작게 되면 단일섬유포집효율은 Eq.(11)로부터 분리되며,  $2h_c/d_f$ 에 점점 가까워지는 것을 알 수 있다. 이 경향은 Kirsch<sup>16), 17)</sup>가 실험적으로 얻었던 결과와 일치한다. 이 이유는  $Pe > 0.1$ 의 경우, 단일섬유포집효율은  $Pe^{-2/3}$ 에 비례하고 있지만, 그 영역에서는  $Pe$ 수의 크기에 따라 확산방정식의 대류항의 영향이 변화한다. 즉  $Pe$ 가 크게 됨에 따라서 입자농도 경계층이 얇게 되고, 이 경계층의 외측을 흐르고 있는 입자는 포집되지 않고서 흘러가기 때문에,  $\eta_c$ 는  $Pe$ 에 의존하는 것이라고 생각할 수 있다. 이에 반해서,  $Pe < 1.0$ 이 되면 브라운 확산이 중요한 포집 메커니즘이기 때문에, 섬유로부터 멀리 떨어진 곳을 흐르는 입자도 브라운 운동에 의해 섬유표면에 포집됨으로서,  $\eta_c$ 는 유속  $U$ , 즉  $Pe$ 에 의존하지 않게 된다고 생각할 수 있다. 그러나, 섬유에 포집되는 입자 수는 그 섬유의 경계영역  $2h_c/d_f$ 에 한정되어 버림으로써, 단일섬유포집효율은 이 값보다 크게 되지는 못한다. 이 때문에  $\eta_c$ 는  $2h_c/d_f$ 에 점점 가까워진다고 생각할 수 있다. 이 수치계산에서는 뒤에 말한 섬유표면에서의 입자의 반발은 고려되지 않았지만, 그렇다할지라도 낮은  $Pe$ 수 영역( $Pe < 1.0$ )에서의 단일섬유포집효율의 평가에서는 Eq(11)가 불충분하다고 말할 수 있다. 다시 말하면, Nano입자의 확산포집을 평가하는 경우, 단일섬유포집효율의 계산에

서는 Eq.(11)은 사용할 수 없게 된다.

### 3.4. 벽면으로부터의 반동에 의한 포집효율 변화

Eq.(11) 과 최근의 Cho의 연구결과를 보

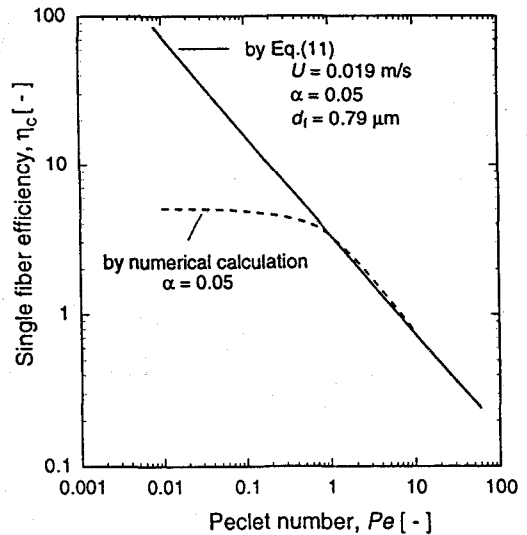


그림 8 Comparison of single fiber efficiency obtained by Eq.(11) and unmerical calculation (Cho et al., 1995)

면, 입경이 작게 되면 포집효율만 상승하던가 그렇지 않으면, 일정한 값에 접근하게 된다는 것을 알 수 있다. 그러나 Wang and Kasper<sup>3)</sup>는 부착효율  $\eta_a=1$ 의 가정은 수  $\mu\text{m}$ 부터 10 nm의 입경입자에 대하여 유효하고, 그 이하의 Nano입자에 대해서는 부착효율이 충돌속도  $V_{im}$ (impact velocity)와 입계속도  $V_c$ (critical velocity)에 따라 변한다고 주장한다. 입자의 필터섬유표면의 평균 충돌속도  $\overline{V_{im}}$ 는, Maxwell-Boltzmann 분포에 따른다고 한다면 다음 식으로 나타낼 수 있다.

$$V_{im} = \left( \frac{48kT}{\pi^2 \rho_p d_p^3} \right)^{1/2} \quad (13)$$

한편 임계속도  $V_{cr}$ 는, 입자의 운동에너지와 필터표면과의 부착에너지의 균형에 의해 결정되고, 임계속도 이상의 속도에서 입자가 섬유 표면에 충돌하는 경우, 입자는 반발하게 된다. 미립자와 표면과의 사이에서 발생하는 힘에 있어서는, Simple한 모델을 이용한 이론적 연구만이 오래 전부터 보고되고 있다. 여기서, Nano입자(Cluster)가 표면에 충

돌하는 때를 모식도로 그림 9에 나타냈다. 충돌한 Nano입자는 섬유표면에서 변형되어, 다시 반발한다. 그림처럼 질량  $m_p$ 인 입자가 고체표면에 속도  $V_{im}$ 로 충돌할 경우 운동에너지는  $0.5m_p V_{im}^2$ 가 된다. 게다가 Nano입자가 물체에 충돌하는 때의 Nano와 물체표면의 소성변화에 의한 접촉 포텐셜에너지, 그 밖의 에너지손실등을 고려하면, 충돌전후의 에너지보존은 다음의 식으로 표현된다.

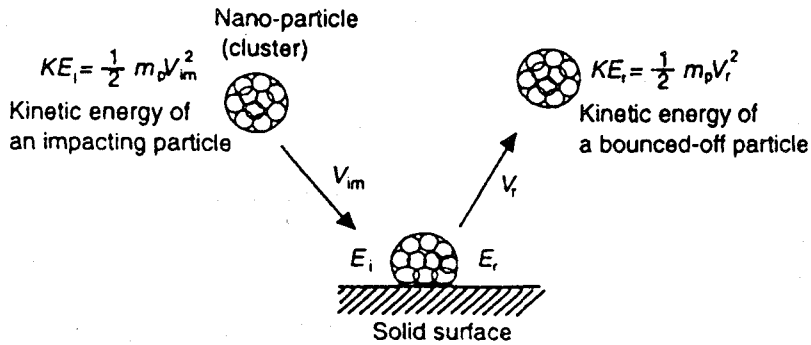


그림 9 Schematic illustration of bouncing-off process of a nano-particle impacting on solid surface.

$$KE_i + E_i - K_L = KE_r + E_r \quad (14)$$

여기서, KE는 입자의 운동에너지, E는 입자와 섬유표면과의 접촉포텐셜에너지,  $K_L$ 은 충돌에 의한 에너지손실이고, 하첨자 i 및 r은 입자가 섬유표면에 충돌한 때와 반발할 때를 나타낸다. 입자가 섬유표면에 포집되는 경우에는 반발입자의 운동에너지  $-KE_r = 0$ 이 되어서, Eq.(14)를 정리하면

$$1 - K_L/KE_i + (E_i - E_r)/KE_r = 0 \quad (15)$$

이 된다. 여기서, 탄성계수 e를 고전이론에 기초로 하여  $(1 - K_L/KE_i)^{1/2}$ 라하면, 입자와 벽면의 소성변화에 의한 접촉포텐셜에너지 차이  $E_i - E_r$ 을 입자와 벽면의 부착에너지  $-E_{aa}$ 라고 하면,

$$e^2 = -E_{ad}/KE_i \quad (16)$$

이 되고, 이 때의 충돌속도  $V_{im}$ 을 임계속도  $V_{cr}$ 로 하면, 그림에서 나타낸 것 같이  $KE_i$ 는  $0.5m_p V_{cr}^2$ 이 됨으로,

$$V_{cr} = \left( \frac{2E_{ad}}{m_p c^2} \right)^{1/2} \quad (17)$$

이 된다. Eq.(17)중의 부착에너지  $-E_{ad}$ 는 입자와 벽면의 재질과 양자의 표면상태에 의존하는 단위부착에너지  $\sigma_{p,s}$ (specific adhesion energy)를 이용하면 다음 식과 같이 나타낼 수 있다.

$$E_{ad} = \frac{\pi d^2 \sigma_{p,s}}{4} \quad (18)$$

여기서  $d$ 는 입자표면과 벽면과의 접촉경 (contact diameter)으로서, Johnson<sup>18)</sup>에 의해 다음 식으로 표현되고 있다.

$$d = \sim \{9\pi^2 d_p^2 \sigma_{p,s} (K_p + K_s)\}^{1/3} \quad (19)$$

Eq.(19)중의  $K_p$  와  $K_s$  는 각각 입자와 벽면의 기계적정수로서, 물질에 따라 고유의 값을 갖는다. 그래서 열 운동에 의한 반발 parameter를  $R_v = V_{im}/V_{cr}$ 라고 정의하면, Eq. (13),(17),(18),(19)로부터

$$R_v = 1.92 \frac{(kT)^{1/2}}{\pi^{5/3} (K_p + K_s)^{1/3} \sigma_{p,s}^{5/6} d_p^{2/3}} \quad (20)$$

이 되고,  $\eta_a$ 는 다음 식이 된다.

$$\eta_a = 1, (R_v \leq 0.38)$$

$$\eta_a = \exp[0.19(\ln(R_v))^3 - 0.879(\ln(R_v))^2] \quad (21)$$

$$-1.652(\ln(R_v)) - 0.655], (0.38 < R_v < 10)$$

그림 10은 Eqs.(11),(20),(21)을 사용하여 단일섬유포집효율  $\eta_s$ , 부착효율  $\eta_a$ , 충돌효율  $\eta_c$ 의 입경에 대한 변화를 계산한 예를 나타냈다. 이 그림처럼 입경이 100 nm부터 10 nm까지는  $\eta_s$ 는 증가하지만, 입경이 10nm이하에서는 반발하기 때문에 역으로 떨어지는 것을 알 수 있다.

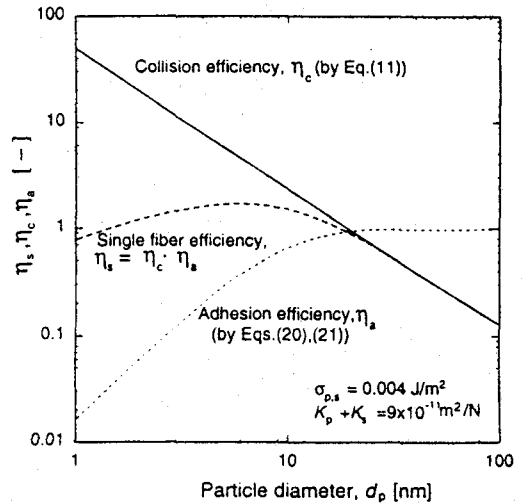


그림 10 Collision, adhesion and combined single fiber efficiencies as a function of particle diameter.

그림 11은 HEPA 필터에 가까운 조건에서의 부착효율  $\eta_a$ 을 고려한 투과율의 계산 예를 나타냈다. 그림처럼,  $\eta_a=1$ 의 경우 입경이 약 100 nm이상에서는 차단효과, 그 이하에서는 브라운확산에 의한 투과율이 저하하는 것을 알 수 있다. 이것으로부터 입경이 약 10 nm이하에서는 반발을 고려한 계산치(실선)로, 반발을 고려하지 않은 값(점선)과는 다

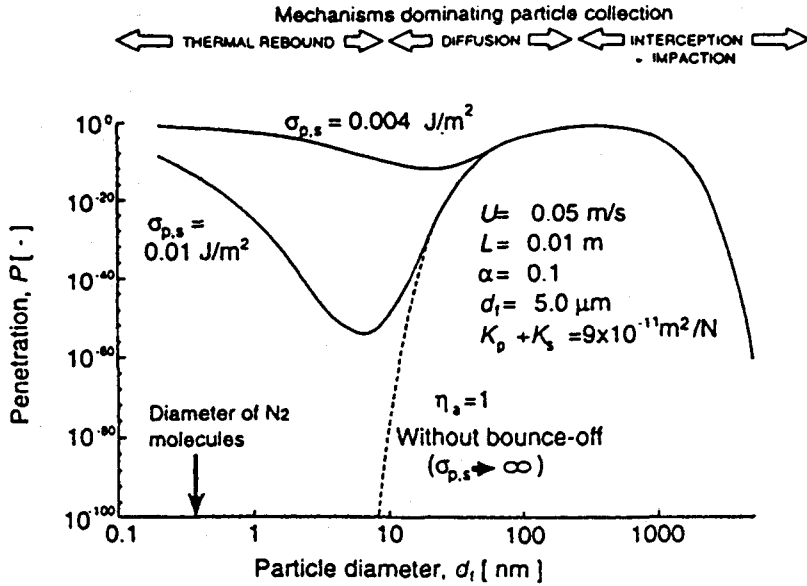


그림 11 Change in penetration through fibrous filter with particle diameter and relative adhesion energy(Wang and Kasper, 1991).

르고, 입경의 감소의 반에서 크게 증가한다. 또, 반발의 투과율에 미치는 영향은 단위부착에너지  $\sigma_{p,s}$ 의 값에 의해서 크게 변하는 것을 알 수 있다. 다시 말하면,  $\sigma_{p,s}$ 를  $0.004 J/m^2$ 로 가정한 경우와  $0.01 J/m^2$ 로 한 경우에는 투과율의 최소 값이  $10^{40}$ 배로 다르게 된다.

그럼에도 불구하고  $\sigma_{p,s}$ 의 정확한 값을 이론적으로 구한다는 것은 거의 불가능하기 때문에, 포집효율에 의한 반발현상의 영향을 이론적으로 평가하는 것은 매우 어렵다. 여기서 Nano입자의 반발에 의한 포집효율의 변화를 단순한 형상을 유지하는 원관을 사용하여 실험적으로 검토한 연구를 소개하고자 한다.

### 3.5. Nano 입자의 반발실험

원관내를 층류로 흐르는 입자의 브라운확산에 의한 벽면에서의 침착은 대류확산방정식을 해석적으로 해석한 것으로부터 구하여진다. 원관의 입구에서는 완전히 발달된 속도분포와 일정하게 안정된 농도분포로 가정하고, 입구와 출구에서의 단면평균농도의 비로서 정의된 투과율 P는, 아래에 나타낸 Gormley and Kennedy의 식에 의해 구한다.

$$P = 0.8191 \exp(-3.657\beta) + 0.0975 \exp(-22.3\beta) + 0.0325 \exp(-57\beta), \quad (\beta \geq 0.0312) \quad (22)$$

$$P = 1 - 2.56\beta^{2/3} + 1.2\beta + 0.177\beta^{4/3}, \quad (\beta < 0.0312) \quad (23)$$

$$\beta = \pi DL\alpha \quad (24)$$

여기서  $L_c$ 는 관길이,  $q$ 는 관내를 흐르는 유량이다. 이 식은 입경이 약 5 nm 이상의 입자에 대해서 실험치와 잘 일치하는 것이 확인되었다. 관의 길이와 유량을 변화시키면서 투과율을 측정함으로써 Eq.(9)의 브라운 확산계수에 의해 입경분포를 구할 수 있으며, 이 원리는 다수의 細管을 설치한 장치인 다관형 Diffusion battery의 원리이다.

大谷 등은, 단분산 은의 Nano입자를 금속제의 원관에 도입하여, 입자의 투과율을 측정하여, Eqs(22)~(24)의 Nano입자에 대한 타당성을 검토하였다. 그림 12에 입경, 관길이, 유량을 변화시켰을 때의 실험치와 계산결과를 비교하여 나타내었다.

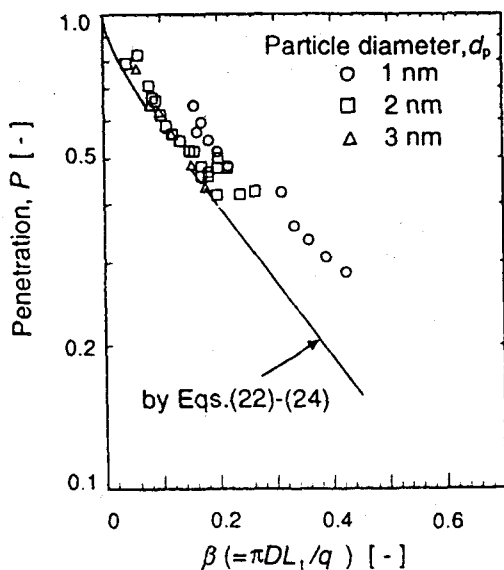


그림 12 Penetrations of nano-particles through circular tubes(Otani et al., 1994)

이 그림은 입경이 1,2,3 nm일 때 parame-

ter  $\beta$ 에 대한 투과율  $P$ 의 변화를 나타낸 것으로서, 실선이 계산선이다. 그림처럼  $\Delta$ 로 표시한 입경이 3 nm인 경우에  $P$ 의 실험치는 계산선과 일치하고 있지만, 2 nm일 때 실험치는 계산선 보다 윗방향에 있다. 또 1 nm의 입경에서는 관의 길이랑 유량을 변화함으로써 변화된  $\beta$ 의 값 전 범위에서 투과율이 높게 된다. 2.2절에서 서술한 확산계수  $D$ 를 보정한 계산치와 실험치와의 차이는 설명될 수 없었으므로, 입경이 약 2 nm 이하가 되면, 입자의 벽면으로부터 반발이 생기며 입경이 작아지면 질수록 현저하게 된다는 것을 실험적으로 증명된 것이다.

단위 부착 에너지를 이용한 반발의 이론적 고찰의 비교 검토는 이후의 과제이다.

### 3.6 Nano 입자의 확산 계수의 보정

2.2절에서 설명한 것같이 입경이 수 nm 정도까지 작아 지면, 확산 계수를 구할 때 Cunningham 보정 계수  $C_c$ 에 대한 보정이 필요하다고 보고되어 있다. Ramamurthi and Hopke<sup>11)</sup>는 Friedlander<sup>22)</sup> 등에 의해 제안된 Eq.(2)중의  $d_p$ 에 Eq.(3)으로 나타냈던 입자 상당직경  $d_p^*$ 을 대입하여 Eq.(2)를 입경이 0.5 nm까지 사용할 수 있도록 했다. 또, Porstendorfer<sup>23)</sup>, Ramamurthi et al.<sup>24)</sup>는 크기가 0.5 nm~2 nm의 Pb<sup>212</sup>원자에 대한 실험으로, 다음의 Eq.(25)가 확산 계수로서 유효한 것을 실험적으로 밝혔다.

$$D = \frac{0.815V_f}{3\pi s^2 N} \left[ \frac{M_p + M_g^{1/2}}{M_p} \right] \tag{25}$$

여기서,  $M_p$ 와  $M_g$ 는 각각의 입자와 가스의 분자량이고,  $N$ 은 가스 분자의 개수농도

(297K에서, 개수/cm<sup>3</sup>), s는 입자 반경과 가스 분자 반경의 합계, V는 가스의 root mean square velocity이다. 또, 대전된 입자의 경우에는 확산 계수는 같은 입경에서도, 일정하지 않고, 입자의 유지대전량에 따라서 변화하며, 다음 식으로 나타낼 수 있다는 보고도 있다.<sup>25)</sup>

$$D = \frac{0.815V_f \left[ \frac{M_p + M_g}{M_p} \right]}{3\pi s^2 N \left[ 1 + \frac{0.402 p^2 e^2 p a^3}{4s^{2kT}} \right]} \quad (26)$$

여기서 a는 가스의 충돌반경이다. Eqs.(2), (3),(9),(25),(26)를 이용하여 확산계수 D를 각각 계산한 결과의 예를 그림 13에 나타냈다.

그림처럼 Eq.(9)와 Eq.(26)에 있는 D의 값에는, 특히 입경이 약 2 nm이하에서 큰 차이가 있는 것을 알 수 있다. 그러므로, 확산에 의한, 입자의 포집 확산계수 측정에 근거하여 입경추정을 검토할 때에는, Nano입자에

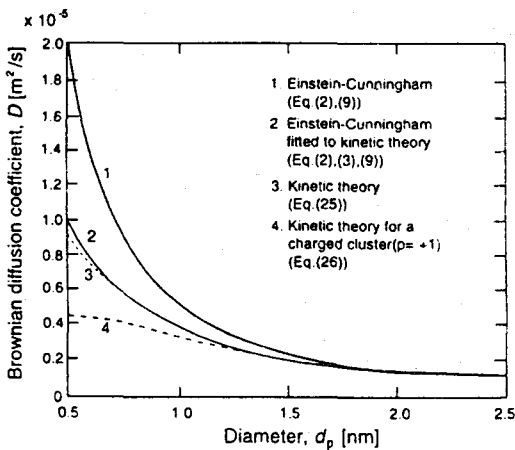


그림 13 Change in Brownian diffusion coefficient, D, with particle diameter.

대한 확산계수의 보정이 중요하다고 생각된다. 다음으로, Air Filter의 포집에 있어서, 반발의 영향과, 확산계수의 보정을 동시에 고려하여 검토를 한다.

3.7 반발과 확산계수의 보정을 고려할 때의 필터 포집효율

그림 14는 충전율 a=0.078, 필터 두께 0.38 mm, 섬유 직경 0.79 μm의 섬유층 필터에서의 투과율의 비교를 나타냈다. 단, 필터여과속도는 0.03 m/s이다.

그림 중의 각선은 각각 다음과 같다. 가는 실선 1은 반발계수를 고려하지 않은 경우의 Eqs.(5),(11)의 있어서 계산선, 두꺼운 실선 2는, Eqs.(20),(21)에 의한 반발을 필터에 고

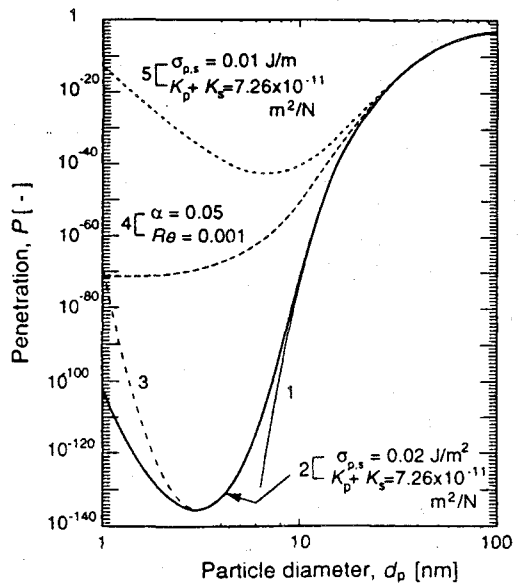


그림 14 Comparison of penetration curves obtained by different calculation methods(U=0.03m/s, α=0.078, t=0.38mm, d\_f=0.79 μm).



려한 계산선, 점선 3은 실선 2에 Eqs.(2), (3), (9)에 의한 확산 계수 D의 보정을 고려한 계산 선을 표시했다. 점선 4는 지그재그로 배열된 원통균필터에 대한 수치 계산의 결과(3.3절)이다. 단 이 수치 계산의 경우만 필터의 층진을  $a=0.005$ ,  $Re=0.001$ 이다. 또, 반발을 고려한 경우(실선 2와 점선3)는,  $K_p + K_s$ 의 값으로서, 은입자를 Glass섬유 표면에 포집하는 경우의  $7.26 \times 10^{-12} m^2/N$ 을 이용하였다. 게다가 입자 직경이 10 nm 부근에서 섬유 표면에서의 반발이 일어나기 시작하는 것처럼,  $\sigma_{p,s}$ 의 값을 equation fitting으로  $0.02 j/m^2$ 로 가정하였다.

이 그림으로부터, 반발이 무시된 결과(실선 1)에서는 10 nm이하의 입자에 대한 투과율은  $10^{-70}$ 이하로 된다. 반발을 고려한 계산치(실선 2)에서는 입자 직경이 약 10 nm부터 반발이 일어난다. 최소 투과율을 표시한 입자 직경은 약 3 nm로되고, 그 이하의 입자 직경에서는 투과율의 증대가 보이며, 입자 직경이 1 nm인 입자의 경우에는  $10^{-102}$ 의 투과율을 나타내고 있다. 이 계산선(실선 2)에 새로이 확산 계수 보정을 고려한 경우(점선 3), 1 nm의 입자에서는  $10^{-70}$ 의 투과율을 표시하며, 확산 계수의 크기에 따라서 입자의 투과율이 다른 것을 알 수 있다. 그러나, 3.3절에서 서술한 것 같이, 실선 1로서 표시된 Eq.(11)은  $Pe < 1$ 에서는 적용할 수 없다. 즉 HEPA 필터와 같은 고성능 필터의 경우, 입경 10nm이하에서는 적용되지 않으므로, 이 Eq.(11)에 근거하여 반발을 고려한 계산 결과는 신뢰될 수 없다는 것을 생각해야 한다. 실제로 투과율이  $10^{-10}$ 정도 이하의 필터의 포집효율을 측정은 매우 곤란하다.

다음으로, 입자와 포집재의 특성에 따라 변화하는  $K_p + K_s$ 와  $\sigma_{p,s}$ 의 값이 반발현상의 변화를 통하여 필터의 투과율에 어느 정도 영향을 미치는가를 검토한다. 한가지 예로서 은입자가 Glass섬유층 필터에 포집된 경우의  $K_p + K_s$ 를  $7.26 \times 10^{-12} m^2/N$ 인 경우,  $\sigma_{p,s}$ 를 변화시켜 계산했다(실선 5). 그 결과,  $\sigma_{p,s}$ 가  $0.001 j/m^2$  이상이 되면, 필터의 섬유 표면에서의 반발이 있다해도, 또한 확산 계수를 보정한 경우에도, 입경 1 nm의 경우의 투과율은  $10^{-13}$ 이하로, 실제 Clean Room에서 청정도를 유지하기 위한 필터로서는 문제가 되지 않는다고 생각하고 있다. 단 필터의 상류 측에서의 Nano입자 혹은, 분자상 Cluster의 농도가 매우 높은 경우는 필터를 통과하는 오염물의 농도도 반발현상 때문에 증가할 것이므로 주의하지 않으면 안된다고 생각한다.

#### 4. 맺음말

선진 산업의 발전에 수반하여 작업 공간 내의 공기의 청정도가 제품의 품질과 수율에 큰 영향을 미친다. 특히 반도체 산업에서는 현재, 1G bite 이상의 고집적도를 위해 회로의 제조 공정에 있어서 오염 제어 때문에, 10 nm 이하의 Nano 입자 및 Ion을 포함한 분자상의 Cluster에 대해서도 관심이 높아지고 있다. 그러나, 이제까지 서술한 Nano 입자의 측정 장치는 아직 완전히 확립돼 있지는 않으며, 측정 자체가 연구 테마로 되어지고 있다. 또한, Nano 입자의 반발 현상은 금속제 원관과 Mesh 등을 이용한 침착 실험에 의해 확인되어지고 있지만, Air Filter에 의한 포집(捕集)에 대해서는 10 nm 이하의 Nano

입자의 반발 현상을 정확히 평가하는 것은 현재에서도 매우 곤란하다.

섬유층 Filter에 대한 반발 현상을 명확히 하는 것은 중요한 연구 과제이지만, Filter 표면에서의 반발에 의한 포집 효율의 변화는 입자가 2 nm 이하의 분자상 Cluster의 경우를 제외하고는 그다지 크지 않다고 본다. 그러나, 제거 대상이 되는 오염 물질이 가스상의 물질, 예를 들면, 2양체(量体), 3양체(量体) 정도의 분자상 물질의 경우, 이 반발 현상은 매우 중요하게 된다고 생각한다.

— 참고문헌 —

- 1) Y.S. Cheng, H.C. Yeh : Theory of a Screen Type Diffusion Battery, J. Aerosol Sci., 11, 313-320(1980)
- 2) Y.S. Cheng, P.B. Denece : Physical Properties of Electrical Mobility Classified Aerosols, J. Colloid Interface Sci., 80, 284-293 (1981)
- 3) Y.S. Cheng, Y. Yamada, H.C. yeh : Diffusion Deposition on Model Fibrous Filters with Intermediate Porosity. Aerosol Sci Technol. 12, 286-299(1990a)
- 4) Y.S. Cheng, Y. Yamada, H.C. Yeh, et. al., : Siae Measurement of Ultrafine Particles (3 to 50nm) Generated from Electrostatic Classifiers. J. Aerosol Research, Japan, 5, 44-51(1990b)
- 5) H.C. Wang, G. Kasper : Filtration Efficiency of Nanometer Size Aerosol Particles, J. Aerosol Sci., 22, 31-41 (1991)
- 6) W. Winklmayr, M. Ramamurthi, R. Strydom, et al., : Siae Distribution Measurement Analyzer Aerosols,  $d_p > 1.8\text{nm}$ . Formed by Radiolysis in a Diameter Measurement Analyzer Aerosol Charger, Aerosol Sci. Technol., 13, 394-398 (1990)
- 7) W. Winklmayr, G.P. Reischl, A.O. Lindner, et al., : A New Electromobility Spectrometer for the Measurement of Aerosol Size Distributions in the Size Range from 1 to 1000nm, J. Aerosol Sci., 22, 289-296 (1991)
- 8) E.O. Knutson, K.T. Whitby Aerosol Classification by Electrical Mobility : Apparatus, Theory, and Applications, J. Aerosol Sci., 6, 443-460 (1975)
- 9) H.G. Scheibel, J. Porstendorfer : Generation of Monodisperse Ag and NaCl-Aerosols with Particle Diameters between 2 and 300nm J. Aerosol Sci., 14, 113-125 (1983)
- 10) Y. Kousaks, K. Okuyama, M. Adachi : Determination of Particle Size Distribution of Ultra Fine Aerosols using a Differential Mobility Analyzer, Aerosol Sci Technol, 4, 209-225 (1985)
- 11) M. Ramamurthi, P.K. Hopke, et al., : On Improving the Validity of Wire Screen Unattached Fraction Rn Daughter Measurements. Health physics, 56, 189-194 (1989)
- 12) M. Ramamurthi, R. Strydom, P.K. Hopke et al : Nanometer and Ultrafine Aerosols from Radon Radiolysis. J. Aerosol Sci, 24, 393-407 (1993)

- 13) A.A. Kirsch, I.B. Stechkina and N.A. Fuchs : Efficiency of Aerosol Filters Made of Ultra fine Polydisperse Fibers. *J. Aerosol Sci.*, 6. 119-124 (1974)
- 14) K.W. Lee and B.Y.H. Liu : Theoretical Study of Aerosol Filtration by Fibrous Filters, *Aerosol Sci. Technol.*, 1, 147-161 (1982)
- 15) 趙相俊, 大谷吉生, 江見準 : 超微細纖維層フィルタによる低Pe數領域での微粒子の捕集, 第12回エアロフル科學・技術聯會討論會, 166-168 (1995)
- 16) A.A. Kirsch, P.V. Chechuev : Diffusion Deposition of Aerosol in Fibrous Filters at Intermediate Peclet Number, *Aerosol Sci. Technol.*, 4. 11-16 (1985)
- 17) V.I. Roldugin and A.A. Kirsch, Diffusional Deposition of Aerosol Particles in Model Filter at Small Peclet Numbers, *J. Aerosol Sci.*, 26, S731-S732 (1995)
- 18) B.K.K. Johnson, K.Kendall, A.D. Roberts, Surface Energy and the Contact of Electric Solids, *Proc. R. Soc. Lond. A.* 324, 301-313 (1971)
- 19) S. Wall, W. John, H.C. Wang, et al, Measurement of Kinetic Energy Loss for Particles Impacting Surfaces, *Aerosol Sci Technol.*, 12 926-946 (1990)
- 20) Y. Otani, S.J. Cho, H.Emi : Removal of nanometer Size Particles and Ions from Air, *Proceedings of the 12th ISCC in Yokohama.* 21-25 (1994)
- 21) Y. Otani, S.J. Cho, H. Emi : Removal of Nanometer Size Particles and Ions from Air, *Proceedings of the 12th ISCC in Yokohama.* 21-25 (1994)
- 22) S.K. Friedlander : *Smoke, Dust, and Haze*, New York. John Wiley & Sons. Inc (1977)
- 23) J. Postendorfer : Die Diffusionskoeffizienten und mittleren freien Weglangen der geladenen und neutral Radon-folge Produkte in Luft. *Zeitschrift fur Physik.* 213, 384-396 (1968)
- 24) M. Ramamurthi, P.K. Hopke : Simulation Studies of Reconstruction Algorithms for the Determination of Optimum Operating Parameters and Resolution of Graded Screen Array System(Nonconventional Diffusion Batteries). *Aerosol Sci. Technol.*, 12, 700-710 (1990)
- 25) S. Chapman and T.G. Cowling *Mathematical Theory of Non-uniform Gases*, Cambridge University Press. Cambridge (1958)