

DBD(Dielectric Barrier Discharge)에 의해 하전된 나노입자의 양극성 대전량 분포

지준호* · 강석훈** · 변정훈** · 황정호†

Bipolar Charge Distribution of Nano Particles Passing through the Dielectric Barrier Discharge Reactor

Jun-Ho Ji, Suk-Hoon Kang, Jung-Hoon Byeon, Jung-Ho Hwang

Key Words: Dielectric Barrier Discharge(DBD), Nano Particle (나노 입자), Bipolar Charge (양극성 대전), Charge Distribution (대전량 분포).

Abstract

Dielectric Barrier Discharges (DBD) in oxygen and air are well established for the production of large quantities of ozone and are more recently being applied to a wider range of after treatment processes for HAPs(Hazardous Air Pollutants). The potential use as a charger for particle collection are not well known. In this work, we measured charge distribution of nanometer or submicron sized particles passing through the dielectric barrier discharge reactor. The bipolar charge characteristics of particles passing DBD reactor were investigated. Fluorometric method using uranine particles and a fluorometer was employed to examine the bipolar charging characteristics of the charged particles by DBD reactor. Finally, the charge distributions of particles were determined from the electrical mobility classification using DMA.

1. 서 론

배리어 유전체 방전(dielectric barrier discharge)⁽¹⁾은 상압에서 사용되는 저온 플라즈마의 한 형태이다. 저온 플라즈마의 또 다른 형태인 코로나 방전의 경우 방전이 와이어(wire)와 핀(pin) 주위 수 mm의 극히 한정된 영역에서만 이루어지지만 배리어 유전체 방전은 전극과 집진판 사이의 공간에 방전이 이루어진다. 배리어 유전체 방전을 사용한 NO_x와 SO_x 등의 유해가스제거 기술이 오래전부터 연구되어왔고, 최근에는 배리어 유전

체 방전부를 2단 전기 집진기(two-stage electrostatic precipitator)에 적용한 연구가 수행되었다.⁽²⁾

배리어 유전체 방전은 교류(AC)전원에 의해 발생되므로 하전 입자는 직류(DC) 코로나 방전과는 달리 양극성으로 하전될 수 있다. 만약 공간적으로 균일하게 양(+)과 음(-)으로 대전된 입자가 분포한다면 전기응집 시스템⁽³⁾에 응용될 경우 미세 나노 입자의 제거에 유용한 기술이 될 수 있다.

입자의 절대 대전량을 측정하는 경우 일반적으로 패러데이 케이지를 이용하여 하전 입자가 전달하는 총 전류량을 측정한다.⁽⁴⁾ 또는 전기적 이동도를 측정하는 방법이 있는데,⁽⁵⁾ 최근에는 DMA(Differential mobility analyzer)를 이용하여 전기적 이동도 분포를 측정하여 하전분포를 얻는 연구가 수행되었다. Patschull과 Roth⁽⁶⁾이 DMA를 이용해 디젤엔진에서 배출되는 입자상 물질의 하전 분포를 측정하였고, 국내에서도 Lee 등⁽⁷⁾이 분

* 연세대학교 나노과학기술연구단

** 연세대학교 기계공학과

† 책임저자, 연세대학교 기계공학과

E-mail : hwangjh@yonsei.ac.kr

TEL : (02)2123-2821 FAX : (02)312-2159

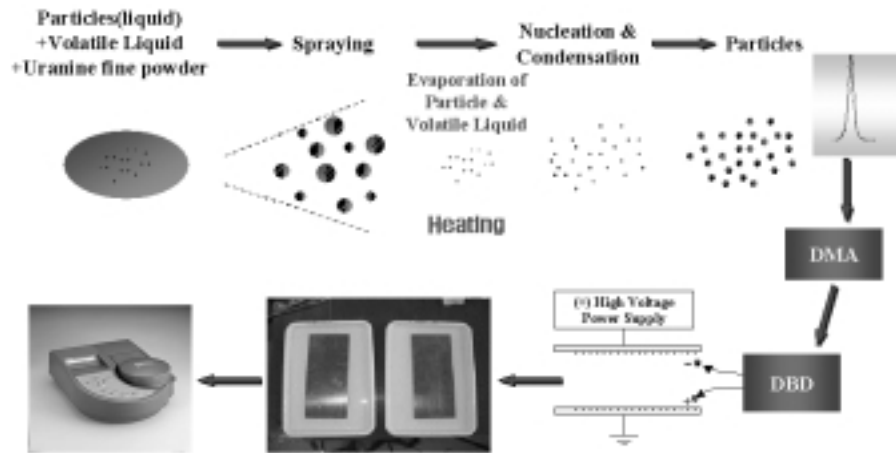


Fig. 1 Measurement procedure using fluorometric method

무대전된 양극성 소금 입자와 코로나 방전에 의해 하전된 단극성 입자의 하전분포를 측정하였다.

본 연구에서는 두 가지 방법을 사용하여 배리어 유전체 방전기에서 하전된 입자의 대전 분포를 측정하였다. 먼저 형광법을 사용하여 DBD 하전기를 통과한 입자의 대전량 분포를 양극과 음극의 비율을 구하였고, 두 번째로 DBD 하전기를 통과한 입자의 전기적 이동도 분포를 측정하여 하전 분포를 얻었다.

2. 실험

2.1 형광법을 이용한 극성별 분포 측정

형광법은 보통 형광물질의 형광도의 상대적 차이를 측정하여 샘플링한 액체나 고체의 정량화에 사용되는 장치이다. 에어로졸 분야에서는 보통 임팩터의 성능평가에서 벽면 손실을 측정하는 용도로 사용했던 방법⁽⁸⁾이다. 즉, 발생된 입자의 일정비율이 형광 물질과 섞여 있는 경우, 샘플의 형광도를 측정하면 입자의 정량적인 농도를 얻을 수 있다.

Fig. 1에 형광계를 이용한 입자의 농도 측정 과정을 나타내었다. 우선 기화-응축 장치를 이용하여 입자를 발생시킬 수 있도록, 평균 입경이 100 nm 정도인 입자를 발생시키기 위해 형광 물질을 용해시킨 용액을 제조했다. 이소프로필알콜 400 ml 용매에 DOS를 0.4 ml 용해시킨 후, 이 용액에 형광 물질인 우라닌(Uranine) 분말을 2 g (5%) 섞어 DOS와 형광 물질의 혼합용액을 제조하였다.

DOS, 이소프로필알콜 및 우라닌으로 구성된 혼합 용액은 분무형 입자 발생기를 통해 분무된다. 기화-응축 장치인 에어로졸 컨디셔너(aerosol conditioner, TSI model 3072)를 통과하면서 평균 입경이 100 nm이고 기하표준편차가 약 1.4인 크기분포의 폭이 상대적으로 좁은 입경분포의 다분산 입자가 생성되는데, 입자가 DBD 방전기를 통과하면서 양극성으로 대전되고 방전기에서 부착되지 않고 통과한 입자들은 방전기 후단의 집진기를 지나간다. 집진기는 전극판(electrode) 1개와 2개의 집진판(ground)을 사용하는 판형 집진기이고, (-)8 kV의 직류 전압이 인가된다. 양극성으로 대전된 입자는 집진판 내에서 전기장에 의해 각 극성별로 전극판(electrode)에는 양으로 대전된 입자가, 접지(ground)판에는 음으로 대전된 입자가 부착된다.

입자의 발생-집진 실험을 1시간동안 수행한 후, 전극판과 접지판을 덕트에서 제거하였다. 노르말 농도로 0.01%인 NaOH 수용액 100 ml가 채워진 두 개의 용기에 전극판과 집진판을 담귀 표면에 부착된 입자를 용해시켰다. 이렇게 제조된 NaOH 수용액과 우라닌 혼합 용액의 형광도를 측정하였다. (+)로 대전된 입자가 용해된 수용액의 형광도와 (-) 대전된 입자가 용해된 수용액의 형광도에 따른 농도를 비교하여 상대적인 비율을 얻었다. 같은 방식으로 용매가 이소프로필 알콜이고 용질이 DOS인 60% 용액을 사용하여 평균 입경이 약 1 μm인 입자의 극성 분포를 측정하였다.

2.2 DMA를 이용한 하전 분포 측정

형광계를 사용한 방법은 DBD 하전기를 통과하

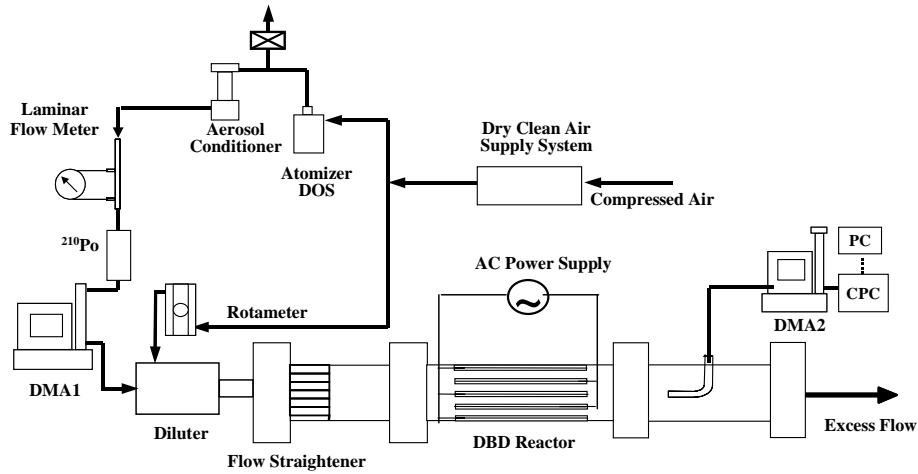


Fig. 2 Schematic diagram of TDMA method for charge distribution of particles passing DBD charger

여 하전된 입자의 하전 분포를 정량적으로 제시하는 방법이 아니라, 단순히 양(+)과 음(-)으로 대전된 입자의 절대 비율만을 얻을 수 있다. 하전기를 통과한 입자의 하전 분포를 얻으려면 두 대의 DMA를 사용하는 TDMA(tandem differential mobility analyzer) 방법을 이용해야 한다. 첫 번째 DMA는 단분산 입자를 발생시키는 용도로 사용하고, 두 번째 DMA는 DBD 하전기를 통과한 하전된 단분산 입자의 전기적 이동도 분포를 측정한다. DBD를 통과한 입자가 1개 이상의 하전 분포를 갖는다면 두 번째 DMA는 각각 다중 전하수에 해당하는 만큼의 피크를 나타내게 된다. DMA의 입자 분류 과정에 대해서는 여러 문헌에 자세히 설명되어 있다.^(9,10)

Fig. 2는 TDMA 방법으로 DBD 하전기를 통과한 입자의 하전 분포를 측정하기 위한 실험 장치의 개략도이다. 분무형 입자 발생기와 에어로졸 컨디셔너를 통과한 기화-응축 방법으로 발생된⁽⁴⁾ 크기분포의 폭이 좁은 다분산 입자는 DMA에서 정확한 단분산 입자로 분류된다. 덕트에 유입되기 전에 깨끗한 공기와 희석된 단분산 입자는 DBD 하전기를 통과하여 양극성으로 다양한 하전 분포를 갖는다. 이와 같이 두 번째 DMA를 통과하면서 2가 이상으로 하전된 입자들은 1가로 하

전된 입자보다 작은 입자인 것처럼 전기적 이동도에 따라 분류된다. 이 때, DMA의 내통과 외통의 전극과 접지의 위치를 변경하면 양으로 대전된 입자의 크기분포와 음으로 대전된 크기분포를 구분하여 얻을 수 있다.

이동도 직경(mobility diameter)은 입자가 1가로 대전되었다고 가정할 때의 전기적 이동도에 해당하는 입경을 의미한다. 즉, DMA가 분류하여 나타내는 기준 입경이고, 만약 입자가 2가로 대전되었다면 DMA는 입자는 1가로 대전된 작은 입자로 분류한다. 식 (1)은 같은 전기적 이동도를 갖는 n_1 으로 대전된 입자와 n_2 로 대전된 입자를 나타내는 식이다.

$$Z_p = n_1 e \frac{C_{d1}}{3\pi\mu d_{p1}} = n_2 e \frac{C_{d2}}{3\pi\mu d_{p2}} \quad (1)$$

여기서 전하수 n_1 이 1이라고 가정하면 n_2 의 전하수를 갖는 직경 d_{p2} 인 입자는 d_{p1} 인 것처럼 분류된다. 즉, DMA에서 분류되는 입경은 d_{p1} 이므로, 식 (2)로부터 이동도 직경을 계산할 수 있다.

$$d_{p1} = \frac{1}{n_2} \frac{C_{d1}}{C_{d2}} d_{p2} \quad (2)$$

Table 1 Classification by DMA for the monodisperse particles with the various number of charge (118 nm)

The number of elementary charges	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
Mobility diameter (nm)	118	79	63	54	48	43	40	37.5	35	33	31.6	30	29	27.8	26.7	25.8

Table 1에는 식 (2)를 이용하여 직경이 118 nm 인 입자의 전하수와 이동도 직경과의 관계를 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

3.1 형광계를 이용한 입자 대전량 측정

형광계를 이용하여 각 극성별 농도비를 측정할 결과를 Table 2에 나타내었다. DBD에 인가되는 교류 전원의 주파수가 60 Hz, 전압이 10 kV(rms) 이고 덕트를 통과하는 면속이 0.64 m/sec 일 때, 하전 입자의 약 90%는 (+)로 대전되었고, 10%는 (-)로 대전되었다. 평균 입경이 1 μm 인 입자의 경우는 (+)가 약 60% 이고 (-)는 40%로 평균 입경이 100 nm 인 입자에 비해서 (-)로 대전된 입자의 농도비가 상승한 것을 알 수 있다.

일반적으로 DC 코로나 방전에 의해 대전된 입자의 경우 인가 전압이 일정할 때, (-)로 하전된 입자의 절대대전량은 (+)로 하전된 입자에 비해 상대적으로 크다.⁽¹⁰⁾ DBD 내에서 이동도가 큰 (-)이온에 의해 입자가 (-)로 대전될 확률이 (+)로 대전될 확률보다 상대적으로 높으면, 전기장에서 전극에 부착되어 제거될 확률도 크다. 특히, 입자가 작을수록 관성이 작고 전기력의 영향을 크게 받기 때문에, DBD 하전기 내에서 입자의 하전량이 약간 증가하더라도 전극에 부착되어 제거될 확률은 크게 증가할 수 있다. 반면에 입자가 1 μm 정도로 크면, (-)로 대전된 입자의 절대 하전량이 증가하더라도 정전기력의 영향의 증가가 관성력의 영향에 미치지 못하기 때문에, DBD 하전기에 부착되는 양은 차이가 크지 않다고 생각된다. 그렇지만 약 0.1 μm인 입자의 경우 약 70%의 입자가 DBD를 통과하는 반면, 1 μm 입자의 경우 하전된 입자 중 약 5% 정도의 입자만이 DBD에

Table 2 Charging characteristics of aerosols penetration DBD

Face velocity (m/sec)	Geometric mean diameter (μm)	Fraction of charged particles	
		positive	negative
0.64	0.1	0.9	0.1
0.64	1	0.6	0.4
1.28	1	0.6	0.4

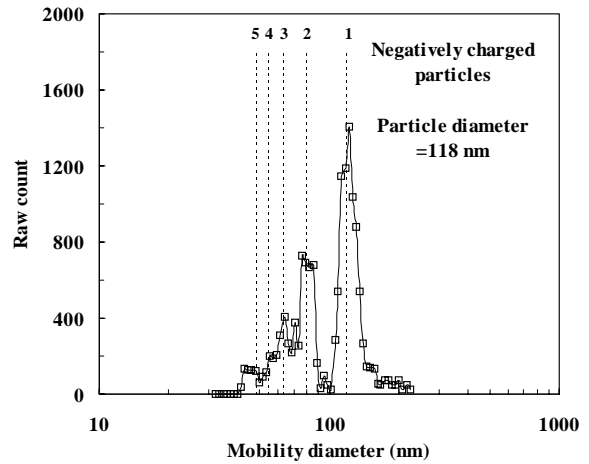


Fig. 4 Electrical mobility distribution for negatively charged particles

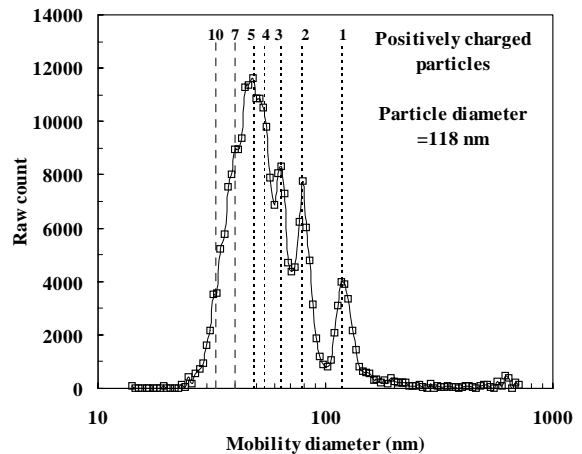


Fig. 3 Electrical mobility distribution for positively charged particles

서 제거되지 않고, 집진부로 유입된다는 것을 고려해야 한다.⁽¹⁰⁾

3.2 DMA를 이용한 입자 대전량 측정

형광계를 이용한 하전 입자의 극성 비율 측정 실험은 하전 입자의 극성이 (+)인지 혹은 (-)인지를 알 수는 있지만, 정량적인 하전분포에 관한 정보는 얻을 수 없다. 그렇지만 만약 같은 두 개의 DMA를 연결하여 사용하는 TDMA(tandem differential mobility analyzer) 방법을 이용하면 하전된 입자의 하전 분포를 정량적으로 측정할 수 있다.

Fig. 3과 4는 기화-응축 방법과 DMA로 분류한 단분산 DOS 입자가 DBD에서 대전된 경우, 두

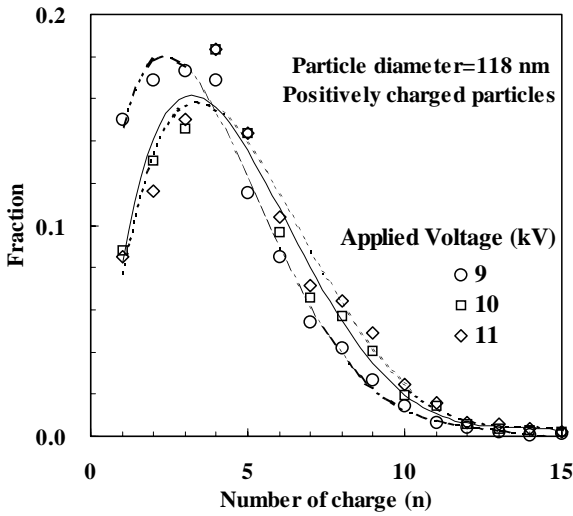


Fig. 5 Charge distribution for positively charged particles

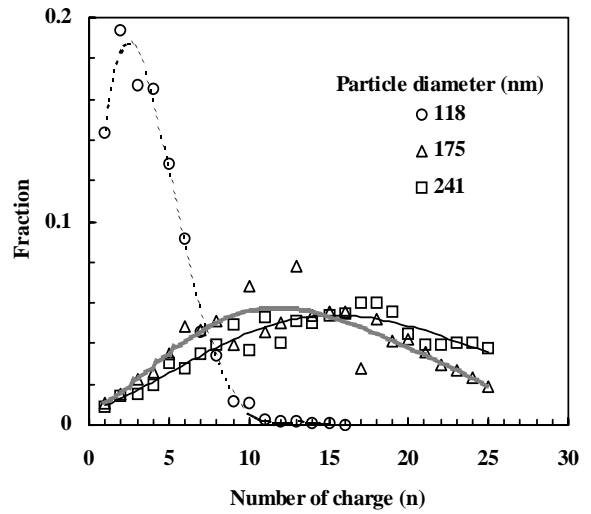


Fig. 7 Charge distribution of positive charged particles varying with particle diameter

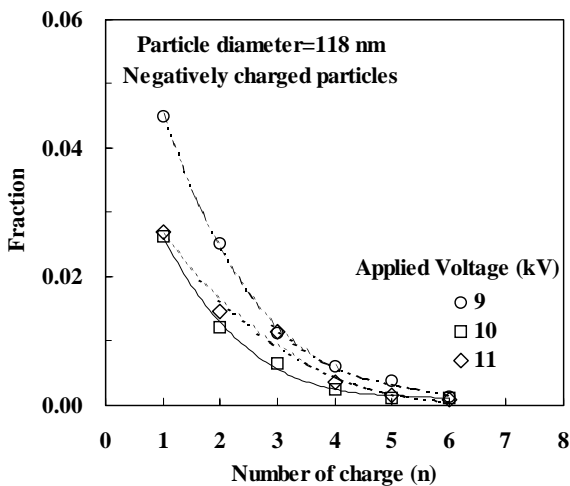


Fig. 6 Charge distribution for negatively charged particles

번째 DMA로 측정된 전기적 이동도 분포를 나타낸다. 1개로 대전된 입자의 경우 실제 크기와 같은 입경인 118 nm에서 피크가 나타나지만, 하전량이 2가 이상일 경우는 실제보다 작은 입자처럼 측정된다. 각각 2가 이상으로 대전된 입자의 이동도에 해당하는 입경은 Table 1에 나타난 값으로 그림에서와 같이 각각 피크로 나타난다. 실제 농도로 환산하면 (+)로 대전된 입자의 전체 농도는 (-)로 대전된 농도보다 9배 정도 크다. 이것은 형광계를 이용한 극성 확인 실험에서 나타난 것처럼 기하평균 직경이 100 nm인 입자의 (+)와 (-)로 하전된 입자의 비율이 9:1인 것과

일치한다.

Fig. 5와 6는 전체 하전 입자 중 각각 입자당 전하수에 해당하는 입자의 비율을 나타낸다. (+)로 대전된 입자의 경우 3~4개로 대전된 입자가 가장 많은 비율을 차지하고, 전체 (+)로 대전된 입자의 평균 입자당 전하수는 입자 전압이 9~11 kV인 경우, 약 3.7~4.5개였다. 반면에 (-)로 하전된 입자는 1개의 전하수를 갖는 입자의 비율이 가장 많고, 평균 입자당 전하수는 입자 전압이 9~11 kV인 경우, 약 0.9~1.6개였다. 이 결과는 DBD 하전기의 방전 공간 내에 (+)의 이온의 비율이 높을 수 있다는 것을 의미한다. (+)로 대전된 입자는 공간에 높은 비율로 존재하는 (+) 이온과 쉽게 충돌하여 절대 대전량이 많은 반면 (-) 이온의 양이 상대적으로 적기 때문에 대전된 입자의 비율이 적고, 또한 입자당 하전수도 상대적으로 작은 것이라 생각된다.

하전분포는 AC 인가 전원의 주파수를 입경을 118 nm로 고정시킨 경우 60, 80, 100 Hz로 변화시킨 경우에도 거의 변화가 없었고, DBD 하전부를 통과하는 공기의 단면유속을 0.64, 1.28, 1.92 m/sec로 변화시킨 경우에도 거의 같았다. 이것은 방전면을 통과하는 입자가 순간적으로 정상상태에 도달하기 때문이라 추정된다. 특히, 방전면 전체에 마이크로 방전이 발생하는 메커니즘 특성상 순식간에 하전과 전하 중화가 반복되고, 결국의 입자 크기에 따라 정상상태(steady state)의 하전 분포에 도달하기 때문이라고 생각된다. 이와 같

은 과정은 양극성 확산 하전의 경우와 유사하다.

이와 같이 형광계의 결과와 TDMA의 결과의 일치는 형광계의 1 μm 입자의 결과도 신뢰성을 줄 수 있다. 비록 TDMA 방법으로 직경이 1 μm 인 입자의 하전분포를 측정할 수는 없지만, (+)로 대전된 입자의 비율이 60%이고 (-)로 대전된 입자로 대전된 비율이 40%인 결과에 의해 (+)와 (-)로 대전된 입자가 대칭에서 약간 벗어난 하전분포를 갖고 있으며, (+)로 대전된 입자의 입자당 전하수는 (-)에 비해 클 것이라 예측할 수 있다. 또한 상대적으로 많은 농도의 (+)로 대전된 입자는 대전량이 크므로 응집기 내의 AC 전기장의 공간에서 체류시간이 증가하게 되고, (-)로 대전된 입자와 충돌할 확률이 증가하므로 응집시스템에 DBD 하전기를 적용할 경우 좋은 효율을 얻을 수 있다는 것을 예측할 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 베리어 유전체 방전(DBD) 반응을 통과한 입자의 하전분포를 측정하였다. 양극성으로 대전된 입자의 극성별 비율을 측정하기 위해 형광법을 사용하였고, 하전 분포를 얻기 위해 두 대의 DMA를 입자 발생과 전기적 이동도 측정에 각각 사용하였다. 입경, 인가전압, 주파수 및 단면 유속에 따른 하전분포를 측정하였다.

(1) 베리어 유전체 방전부를 0.64 m/s로 통과한 직경 100 nm인 입자의 경우 형광법에 의해 실험한 결과, 양(+)과 음(-)으로 대전 입자의 비는 약 9:1 정도였다. 반면 직경이 약 1 μm 인 입자는 약 6:4였다.

(2) 입경이 118 nm인 경우 전기적 이동도 분포를 이용하여 하전분포를 측정하였는데, 양(+)으로 대전된 입자와 음(-)으로 대전된 입자의 비율이 9:1 정도로 형광법의 결과와 거의 같았다.

(2) 입경이 증가할 경우 하전분포로부터 계산한 극성별 입자당 평균 하전수는 증가하지만, 인가전압, 주파수, 통과유량에 따른 하전분포는 거의 변화가 없었다.

후 기

본 논문은 중소기업청 주관 「2002년도 산학연 공동기술개발 컨소시엄사업」의 지원으로 이루어진 것이므로 이에 관계자 여러분께 감사드립니다.

참고문헌

- (1) Falkenstein, Z., 1998, "Application of Dielectric Barrier Discharge," *12th Int. Conf on High-Energy Particle Beams, Beams'98, Haifa, Israel*, June 7~12.
- (2) Sano, Y., Kuroda, Y., Kawada, Y., Takahashi, T., Ehara, Y. and Ito, T., 2001, "Effect of Electric Source Frequency at ESP by Barrier Discharge System," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 32, pp. s881~s882.
- (3) Ji, J.H., Hwang, J., Bae, G.N. and Kim, Y.G., 2001, "Experimental Study on Electrical Agglomeration of Liquid Particles in an Alternating Electric Field," *KSME Journal B*, Vol. 25, No. 3, pp. 442~450.
- (4) Ji, J.H., Bae, G.N., and Hwang, J., 2003, "Effect of Particle Clogging in Orifices on the Particle Collection Efficiency of a Micro-Orifice Impactor," *KSME Journal B*, in press.
- (5) Krupa, A. and Jawork, A., 1989, "A Method for Aerosol Particle Charge Measurements," *J. Electrostatics*, Vol. 23, pp. 289~292.
- (6) Biermann, A and Bergman, W., 1984, "Measurement of Aerosol Concentration as a Function of Size and Charge," *Aerosol Sci. Technol.*, Vol. 3, pp. 293~304.
- (7) Patschull, J and Roth, P., 1992, "Charge and Size Distribution of Particles Emitted from a DI-Diesel Engine," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 23, pp. s229~s232.
- (8) Marple, V.A., Rubow, K.L., and Behm, S.M., 1991, "A Microorifice Uniform Deposit Impactor (MOUDI): Description, Calibration, and Use," *Aerosol Sci. Technol.*, Vol. 14, pp. 434~446.
- (9) Lee, J. B., Bae, G. N., Hwang, J. and Lee, K. W., 2001, "Charge Distribution of Submicron Particles Charged by Spray Electrification or Corona Discharge," *KSME Journal B*, Vol. 25, pp. 124~132.
- (10) Ji, J. H., 2003, *Change of Particle Size Distribution Using Corona Discharge and Classifying Characteristics of Charged Particles*, Ph.D. Thesis, Yonsei University.