

금속 마이크로입자 및 압밀 시편의 펄스레이저 어블레이션에 의한 나노입자 합성

장 덕 석[†], 김 동 식^{*}

(2003년 3월 31일 접수, 2003년 7월 4일 심사완료)

Nanoparticle Synthesis by Pulsed Laser Ablation of Metal Microparticle and Consolidated Sample

Deoksuk Jang and Dongsik Kim

Key Words : Nanoparticle(나노입자), Laser Ablation(레이저 어블레이션), Consolidated Sample(압밀 시편), Microparticle(마이크로입자).

Abstract

This paper describes the process of nanoparticle synthesis by laser ablation of microparticles and consolidated sample. We have generated nanoparticles by high-power pulsed laser ablation of Al, Cu and Ag microparticles using a Q-switched Nd:YAG laser (wavelength 355nm, FWHM 6ns, fluence 0.8~2.0J/cm²). Microparticles of mean diameter 18 ~ 80 μ m are ablated in the ambient air. The generated nanoparticles are collected on a glass substrate and the size distribution and morphology are examined using a scanning electron microscope and a transmission electron microscope. The effect of laser fluence, collector position and compacting pressure on the distribution of particle size is investigated. To better understand the process of laser ablation of microparticle(LAM), we investigated the Nd:YAG laser-induced breakdown of Cu microparticle using time-resolved optical shadow images. Nanosecond time-resolved images of the ablation process are also obtained by laser flash shadowgraphy. Based on the experimental results, discussions are made on the dynamics of ablation plume.

기호설명

- D : 입자 수거대와 타겟과의 거리
- F : 레이저 플루언스(fluence)
- l : 마이크로입자의 반지름
- α : 열 확산도
- μ_m : 마이크로입자의 평균 지름
- μ : 나노입자의 평균 지름
- τ : 마이크로입자에서의 열전달 시간
- σ : 표준편차

1. 서론

수 나노미터에서 수십 나노미터까지의 크기를 갖는 초미립자(나노입자)는 표면에 존재하는 원자의 수가 입자 내부의 원자의 수와 같은 정도의 크기를 가질 수 있고 전체에너지에서 표면에너지가 차지하는 비율이 커지게 되므로, 마이크론 이상의 크기를 갖는 입자들과는 전혀 다른 기계, 화학, 전자기 및 광학적 성질을 지니게 되어 그 중요성이 최근 급격히 증대되고 있다. 따라서 나노입자의 생성 기법에 관해 최근 많은 연구가 수행되어 왔다.⁽¹⁻³⁾ 그 중, 일반 대기 상태 또는 불활성 기체 분위기 하에서 마이크로미터 크기의 입자를 어블레이션(ablation)시켜 나노입자를 생성하는 LAM (laser ablation of microparticles) 기법은 공정의 단순함과 생성된 입자의 크기분포가 균일하다는 장점

[†] 책임저자, 회원, 포항공과대학교 대학원 기계공학과
E-mail : dskim87@postech.ac.kr
TEL : (054)279-2179 FAX : (054)279-3199
^{*} 회원, 포항공과대학교 기계공학과

으로 인해 많은 주목을 받고 있다.⁽⁶⁻⁸⁾ 특히, 공기 중에서 입자를 생성하는 LAM 기법은 매우 간단하고 효율적인 입자 제조법으로 대량으로 입자를 생산할 수 있는 가능성을 가지고 있다. 그러나 LAM 기법에 관한 많은 연구에도 불구하고 입자 생성을 제어하는 인자들의 역할은 충분히 규명되지 못한 실정이다. 또한 통상적인 LAM 기법에서는 원료가 되는 마이크로입자를 매탄올과 같은 현탁액(liquid suspension)을 이용하여 고정대에 부착시키거나, 에어졸 형태로 공급해야 하므로 시스템이 복잡해지고 연속적인 생산이 힘들어 지는 문제가 발생한다. 본 연구에서는 기존의 LAM 공정을 이용하여 나노입자의 생성을 확인하고, 급속 마이크로입자를 상온에서 압접시켜 고정화 한 압밀 시편(consolidated microparticles target)을 공기 중에서 어블레이션시켜 나노입자를 생성하는 새로운 공정을 제안하고 분석하는 것을 주목적으로 한다. 새롭게 제안된 LACM(laser ablation of consolidated microparticles) 방법은 기존의 LAM 기법을 변형한 것으로서 고정화 시의 압력을 변화시켜 생성되는 나노입자의 크기를 조절할 수 있고 원료시편의 조성을 쉽게 변화시킬 수 있다는 장점을 지닌다. 본 연구에서는 LAM 및 LACM 기법에서 레이저 플루언스(fluence), 입자 수거대(glass substrate)의 위치, 압접 시 압밀 시편에 가해진 압력 등이 생성되는 나노입자의 크기 분포에 미치는 영향을 고찰하였다. 레이저 어블레이션을 이용하여 나노입자를 생성하는 기법에서 나노입자의 특성을 제어하기 위해서는 입자의 핵 생성에서부터 어블레이션 플룸의 진행 전 과정을 실험적으로 관측하는 것이 필요하다. 본 연구에서는 레이저 설파그라피(laser flash shadowgraphy)를 이용하여 어블레이션 과정에서 생성되는 충격파(shock wave) 및 플룸(plume)의

거동을 관찰하였다.

2. 실험

실험은 구리(Cu), 은(Ag), 알루미늄(Al) 마이크로입자를 가지고 수행하였으며 순도는 각각 99.5, 99.99, 99.9%(제조사: Cerac, Inc.)이다. 구리와 은의 경우, 평균직경은 각각 48 μm 와 18 μm 이며, 알루미늄의 경우, 평균직경이 18, 48 μm 인 입자를 대상으로 실험을 수행하였다. Fig. 1 은 LAM 및 LACM 에 의해 나노입자를 합성하는 실험장치의 개략도를 나타낸 것이다. 1064 nm 의 파장에 반치전폭(FWHM)이 5 ns 인 펄스를 발진하는 Q-switched Nd:YAG 레이저(제조사: Continuum, 모델: Surelite II-10)가 실험에 이용되었다. 1064 nm 의 레이저 파장을 조화파 생성기(harmonic generator)를 통하여 355nm 파장의 레이저 펄스를 만들어 실험에 이용하였다. 모든 나노입자 제조공정은 대기중에서 이루어졌으며, 어블레이션을 통하여 생성된 나노입자는 시편과 평행하게 위치한 유리기층에 부착되어 수거된다. 충분한 개수의 입자가 얻어진다면, 나노입자의 형상, 크기분포, 성분 등은 X-선 회절 분석(XRD), 투과전자현미경(TEM)을 이용하여 분석하였다. 입자의 크기 및 분포는 전자현미경을 통하여 얻어진 이미지로부터 약 200 여 개의 평균값을 통하여 얻어졌으며, 크기를 측정할 때의 정밀도는 약 5 nm 이하이다.

마이크로입자의 어블레이션에 의한 나노입자의 생성과정을 가시화하기 위해 Fig. 2 와 같은 레이저 설파그라피 장치를 구성하였다. Nd:YAG 레이저의 의해서 발생하는 어블레이션 플룸과 충격파는 5 ns 의 펄스 폭(FWHM)을 가지는 질소레이저에 의해서 여기되는 색소레이저에 의해서 752x480 pixels

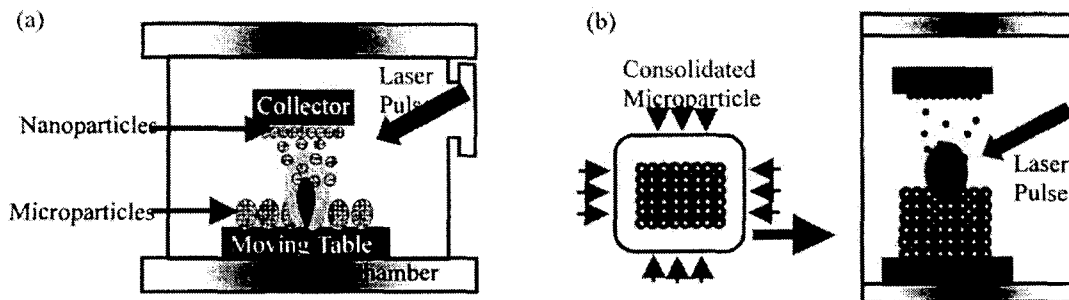


Fig. 1 Experimental setup for (a) LAM and (b) LACM

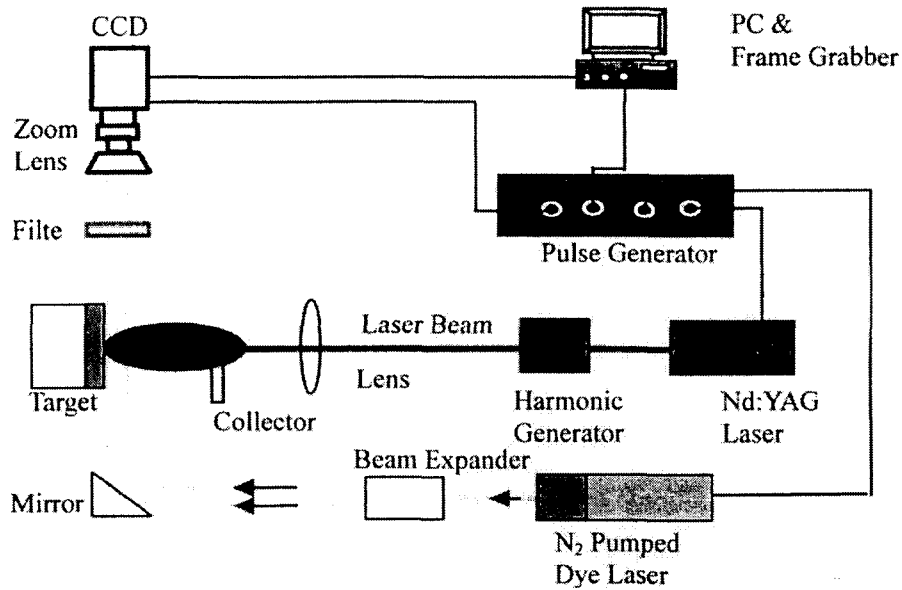


Fig. 2 Experimental setup for laser flash photography

을 가지는 CCD(제조사: COHU) 카메라에 기록된다. 질소레이저에 의해서 가시광선을 발생시키는 색소로 Rhodamine 640 을 이용하였다. Nd:YAG 레이저와 색소레이저의 조사 시점을 펄스 발생장치 (pulse generator)를 이용하여 동기화하고, 이후 색소레이저의 조사시점을 변화시키면서 실험을 반복하면 수 나노초 단위의 시간 정밀도를 가지는 섬광사진을 획득할 수 있다. 본 연구에 이용된 가시화 장치는 기존의 타 연구에서 이용된 것과 유사하다.^(9,10)

마이크로입자 시편을 만들기 위해 두 가지의 방법이 사용된다. 첫 번째는 마이크로입자를 메탄올 현탁액을 이용하여 유리기층 위에 고르게 분포시킨 후 현탁액을 증발시켜 고정시키는 것이며, 두 번째는 마이크로입자를 저온 압축하여 원하는 입자밀도를 갖는 시편을 제조하는 방법이다. 압밀 시편은 냉등압 압형기(cold isobaric press)를 이용하여 200 MPa 이하의 다양한 압력으로 마이크로입자를 압착하여 제조하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 LAM 및 LACM 기법에 의한 나노입자 합성
펄스레이저 어블레이션에 의해서 생성된 나노입자의 XRD 패턴을 조사한 결과, Cu, Al, Ag의 금속 마이크로입자로부터 CuO, γ -Al₂O₃, Ag 나노입자가 생성됨을 알 수 있었다.

Fig. 3 에는 레이저 어블레이션을 통해서 제조된 나노입자의 모습이 나타나 있다. 나노입자는 전체

적으로 구형의 모습을 하고 있으며 크기도 약 20nm 이하의 수준으로 작고 균일하게 분포하고 있음을 볼 수 있다.

공정변수를 조절하여 입자의 평균 크기 및 입자의 크기 분포를 조절할 수 있으므로, 공정변수의 제어가 레이저 어블레이션을 이용하여 나노입자를 제조할 때 중요한 부분이 된다. 레이저 어블레이션 공정을 통하여 나노입자를 얻는 방법은 상대적으로 많은 공정변수가 존재하게 된다. 이번 연구에서는 레이저 플루언스, 입자 수거대의 위치, 그리고 LACM 기법에서 압밀 시편을 제작할 때 시편에 가해진 압력을 공정변수로 정하였다. 레이저 플루언스는 타겟을 어블레이션 시킬 때 발생하는 어블레이션 플룸의 양 및 이후의 동적 거동에 큰 영향을 미친다. 생성된 나노입자를 수집하는 수거대의 위치 변화를 통해서 플룸이 진행하면서 나노입자가 성장하는 특성을 볼 수 있으며, LACM 시편에 가해진 압력은 어블레이션 타겟의 상태가 나노입자 생성에 미치는 영향을 알려준다.

Table 1 은 전체적인 공정변수와 생성된 입자의 특성이 표시되어 있다. 대기 상태에서 LAM 또는 LACM 기법을 통해 나노입자를 제조할 때, 플루언스, 입자수거대의 위치, 그리고 준비시편에 가해진 압력의 3 가지 변수에 대한 결과를 알아보았다. 실험의 결과를 변수 별로 분리하여 Fig. 4 에 나타내었다. 어블레이션을 통하여 생산되는 입자가 시편의 표면에서부터 어떻게 성장하는지를 살펴보기 위하여 입자를 수거하는 위치를 표면에서부터 2에서 10 mm 까지 2 mm 간격으로 변화시켜 보았다.

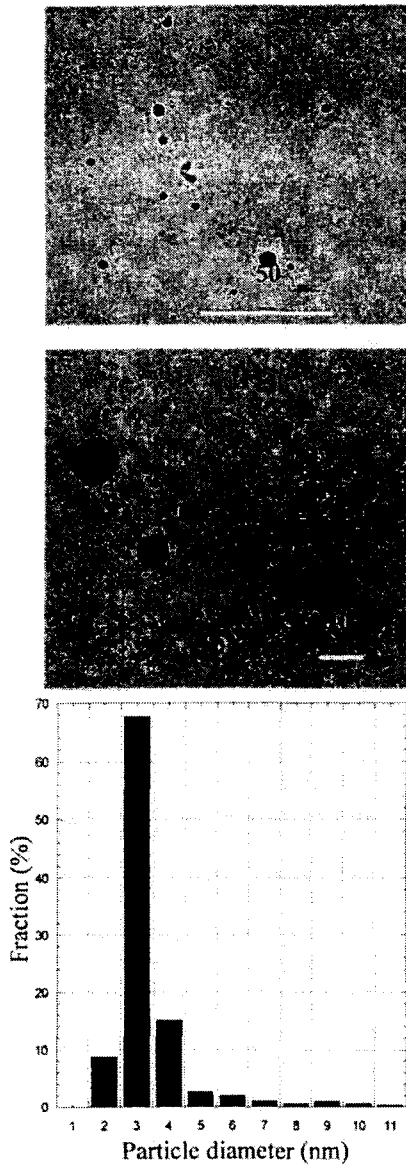


Fig. 3 TEM images and size distribution of silver nanoparticles generated from LACM method. Nanoparticles are produced at fluence 2 J/cm² and wavelength 355 nm. Silver micro-particles are consolidated at 40 MPa.

측정된 입자의 크기는 Fig. 4(a)에 표시하였다. 입자가 타겟에서 어블레이션 된 이후 2, 4 mm 떨어진 수거대에 모아질 때에는 약 25 nm의 평균 크기를 가지나 타겟으로부터 일정거리(이번 실험에서는 6 mm) 떨어진 수거대에서는 그 평균 크기가 약 35 nm로 더 커짐을 알 수 있다. 레이저 어블레이션 시에 발생한 플룸은 표면에서 방출된 이후 서로 충돌하고 또는 전기적 응집에 의해서 뭉치며, 이후 냉각되어 나노입자를 생성하게 된다. 즉, 입자의 평균 크기는 일정거리를 이동한 이후 성장을

Table 1 Nanoparticle size distribution for representative parameter (Ablation in air condition (wavelength 355nm))

Material	μ_m (μm)	Target Preparation	F (J/cm ²)	D (mm)	μ (nm)	σ (nm)			
Cu	48	LACM 200 MPa	0.8	5	23	5			
			1.2		25	8			
			1.6		26	7			
			2.0		31	12			
			LAM	2	28	8			
				4	22	4			
				1.2	6	34	7		
				8	37	7			
				10	33	11			
				1.0	5	31	10		
Al	48	LAM	1.1	7	29	9			
	48	LAM	1.1	5	19	6			
	18	LAM	1.1	7	38	12			
Ag	18	LACM	(MPa)		1.2	5	24	6	
			20	25					7
			40	28					8
			100	47					16

D : Distance between target and collector

F : Laser fluence

μ_m : Mean diameter of microparticle

μ : Mean diameter of nanoparticle

σ : Standard dispersion

멈추고 일정한 크기를 가지는 나노입자가 형성된다는 것을 보여준다.

다른 모든 변수들을 고정하고 레이저의 플루언스를 0.8에서부터 2 J/cm²까지 0.4 J/cm²씩 증가시키면서 실험을 수행한 결과가 Fig. 4(b)에 나타나 있다. 입자의 평균 크기는 레이저의 플루언스가 0.8에서부터 2 J/cm²로 증가함에 따라서 25 nm에서 35 nm로 함께 증가함을 알 수 있다.

Fig. 4(c)에는 LACM의 방법을 통해서 나노입자를 제조할 때 준비된 시편의 상태, 즉 마이크로입자를 고정화 할 때 가해진 압력이 생성되는 나노입자의 크기에 미치는 영향이 나타나 있다. 압밀 당시 가해진 압력이 20에서 150 MPa로 증가할 때 제조된 입자의 평균 크기도 24에서 47 nm로 증가함을 볼 수 있다. 압밀 할 때의 압력이 크면 만들어진 시편은 벌크 시편과 같은 성질을 지니고 어블레이션이 시작되는 에너지 값도 커진다. 강한

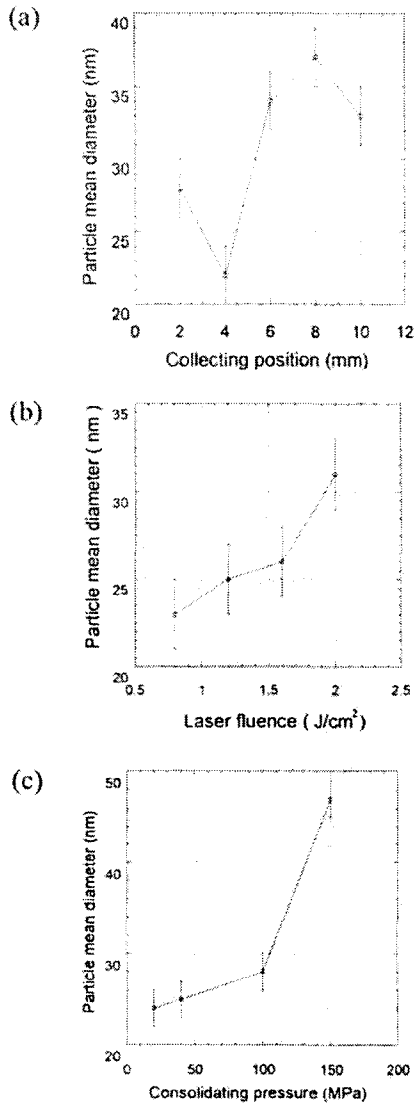


Fig. 4 Mean nanoparticle diameter vs. (a) target-to-collector distance, (b) laser fluence with consolidated Cu microparticles, and (c) compacting pressure with Ag microparticles as an ablation target.

압력을 가해 만든 시편은 낮은 압력에 의해 만들어진 시편에 비해서 입자들 간에 강한 결합력을 가지게 되고 마이크로입자의 특성을 상실하게 된다. LACM 기법을 이용하여 나노 입자를 제조할 때에는 고형화 할 때의 압력이 레이저 어블레이션의 효율을 크게 결정할 뿐 아니라, 입자의 크기 및 크기 분포에도 커다란 영향을 주므로 고형화 당시의 압력의 조절이 중요한 역할을 한다.

3.2 가시화 실험

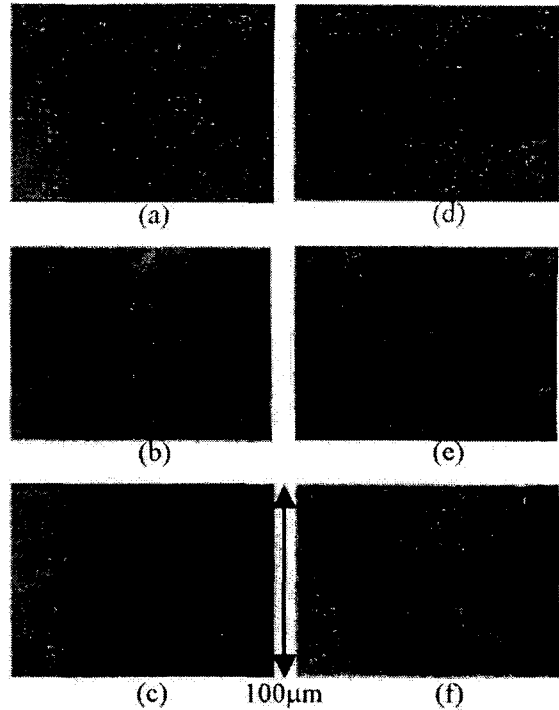


Fig. 5 Shadow images of the exploding Cu microparticle at various delay times. Incident laser wavelength is 355 nm and fluence 1 J/cm^2 . (a) Before breakdown, after breakdown at (b) 50 ns, (c) 90 ns, (d) 200 ns, (e) 300 ns, and (f) 400 ns.

LAM 기법을 이용하여 나노입자를 합성할 때 금속 마이크로입자와 레이저 펄스가 반응하면서 나타나는 현상을 레이저 샘플사진법을 수행하여 관찰하여 보았다.

Fig. 5는 355 nm 파장, 1 J/cm^2 의 플루언스에 대해서 실험한 결과이다. 레이저 펄스가 조사되면서 50 ns 부분에서 마이크로입자를 기준으로 충격파가 발생하고 100ns 에서 표면에 어블레이션이 발생하기 시작하고 300 ns 부분까지 점차 확산된다. 400 ns 에서 마이크로입자가 전체적으로 폭발하여 어블레이션 플룸이 흩어진다. 이러한 금속 마이크로입자의 폭발과정은 이전의 유리 마이크로입자를 이용한 실험과는 다른 양상을 보여준다. 유리와 같이 빛에 대해서 투명한 마이크로입자는 구형의 모양이 빛을 모으는 렌즈 역할을 하여, 10 ns의 펄스 레이저가 조사되면, 약 5 ns 이내에 입자 내부에서 폭발이 진행되며 펄스 조사가 끝나는 약 10 ns 부분에서 폭발이 완료된다.⁽¹³⁾ 그러나 금속 입자의 경우 레이저의 조사가 끝난 이후 약 400 ns의 시간이 지난 이후에 마이크로입자의 폭발이 발생하게 된다. 레이저 에너지가 마이크로입자의 표

면의 온도를 상승시키고 이후 입자의 전체적인 온도가 상승하여 폭발이 일어나기까지 어느 정도의 시간을 필요로 하게 되는 것이다. 레이저 어블레이션에 의한 금속 마이크로입자의 폭발은 입자에서의 열 확산, 충격파의 전파, 열 팽창 등의 효과를 고려하여 설명할 수 있다. 레이저 펄스가 마이크로입자의 표면에 입사 될 때 표면의 온도가 상승한 이후 입자의 중심까지 열이 확산되는데 필요한 시간(τ)은 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$\tau \approx l^2 / 4\alpha \quad (1)$$

이때 Cu의 열확산도 α ($117 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$)와 마이크로입자의 반지름($24 \mu\text{m}$)을 l 에 적용하면 기준 시간은 약 $1.2 \mu\text{s}$ 이다. 레이저 펄스는 입자의 한쪽 면만을 가열하기 때문에 입자의 열 팽창은 불균일하게 발생하기 때문에 입자의 폭발을 야기하는 요인이 될 수 있다. 또한 입자의 표면에 입사된 짧은 레이저 펄스는 충격파를 만들어 내게 된다. 이러한 충격파는 입자의 내부에서 전파되고 다른 표면에서 반사되면서 기계적 힘을 입자에 가하게 된다. 이러한 힘의 작용이 마이크로입자를 폭발을 야기하는 요인으로 작용할 수 있다.⁽¹³⁾

금속 마이크로입자를 이용하여 나노입자를 제조할 시에는 마이크로입자가 폭발하는 한계 플루언스를 측정하여 이를 응용하는 것이 중요할 것이다. 기존의 많은 연구들은 일반 벌크 시편에서는 어블레이션이 야기되는 한계 플루언스 이하에서도 마이크로입자가 폭발하여 나노입자가 형성될 것이라고 예측하고 있다. 최근 마이크로입자를 대기 중에 분무 시키고 펄스레이저를 조사하여 대량의 나노입자를 제조하려는 연구가 시도되고 있는데⁽¹⁴⁾ 분무된 마이크로입자를 모두 어블레이션시켜 나노입자 제조의 효율을 높이기 위해서는 마이크로입자의 폭발을 야기할 수 있는 파장 및 플루언스의 조절이 반드시 필요할 것이다.

향후 입자의 대량 생산을 위해서는 입자수거 시스템 개발 그리고 액상에서 유사한 방법을 이용하여 나노입자를 제조하는 공정에 관한 연구가 필요하다고 판단된다.

4. 결론

본 연구에서는 Nd:YAG 펄스레이저를 이용하여 Al, Cu, Ag 마이크로입자를 어블레이션시켜 나노입자를 제조하는 공정을 구현하였고, 입자의 제조 과정을 분석하였다. 기존의 LAM 기법과 좀더 개선된 LACM 기법에 대해 실험을 수행하였고, 공정 조건들과 입자 제조 결과에 대해서 관찰하였다.

대기 중에서 LAM 공정을 통해 수십 nm의 평균 지름을 가지는 나노입자를 제조하였다. LACM 기법을 적용할 때 어블레이션의 공정 단계가 축소되었고, 반복적인 어블레이션이 가능하게 되었다. 이러한 결과는 나노입자의 대량 생산 가능성을 보여준다. LAM 및 LACM 공정에서 생성된 나노입자의 평균 크기는 레이저 플루언스와 마이크로입자의 압밀 시의 압력이 증가함에 따라 커졌다. 대기 상태에서 수거대의 위치를 조절하여 나노입자를 수거한 결과, 입자의 크기가 일정한 거리를 진행한 이후 변하지 않음을 알 수 있었다. 이는 금속 재료가 어블레이션된 이후 표면으로부터 진행하면서 점차 성장하고 이후 일정한 크기를 지니는 나노입자가 뿜을 보여주는 것이다. 공정 변수들과 생성된 입자의 크기 특성의 관계를 규명함으로써 나노입자의 제조 시 크기 제어가 가능함을 알 수 있다.

이후 레이저 선편 사진법을 통하여 나노입자의 제조 시 발생하는 충격파 및 어블레이션 플룸의 이동 과정을 분석하였다. 레이저 선편사진법을 통하여 펄스 레이저가 입사한 이후 마이크로입자의 변화 과정을 살펴본 결과, 입자의 표면에서 어블레이션이 일어나고, 입사된 레이저의 특성에 따라서 완전히 폭발하기도 하고, 또는 부분적으로 어블레이션된 이후 시편으로부터 떨어져 나가기도 한다. 따라서 나노입자의 생성 효율의 증가를 기대하려면 마이크로입자가 폭발하는 레이저의 파장 및 플루언스 등에 관한 추가적인 연구가 필요할 것이다.

후 기

본 과제는 과학재단 목적기초연구(No. 2001-1-30400-022-2)의 지원으로 수행되었다.

참고문헌

- (1) Mafuné, F., Kohno, J., Takeda, Y., Kondow, T. and Sawabe, H., 2000 "Formation and Size Control of Silver Nanoparticles by Laser Ablation in Aqueous Solution," *Journal of Physical Chemistry B*, Vol. 104, pp. 9111~9117.
- (2) Lee, D. and Choi, M., 2000, "Control of Size and Morphology of Nano Particles Using CO₂ Laser During Flame Synthesis," *Journal of Aerosol Science*, Vol. 31, pp. 1145~1163.
- (3) Skandan, G., Chen, Y.J., Glumac, N. and Kear, B.H., 1999, "Synthesis of Oxide Nanoparticles in Low Pressure Flames," *Nanostructured Materials*, Vol. 11, pp. 149~158.
- (4) Herley, P.J. and Jones, W., 1993, "Nanoparticle

- Generation by Electron Beam Induced Atomization of Binary Metal Azides," *Nanostructured Materials*, Vol. 2, pp. 553~562.
- (5) Gorla, C.R., Liang, S., Tompa, G S., Mayo, W.E. and Lu, Y., 1997, "Silicon and Germanium Nanoparticle Formation in an Inductively Coupled Plasma Reactor," *Journal of Vacuum Science & Technology A*, Vol. 15, pp. 860~864.
- (6) Juang, C.B., Chi, H., Becker, M.F., Keto, J.W. and Brock, J.R., 1994, "Synthesis of Ultrafine Glass Particles by Laser Ablation of Microspheres," *Nanostructured Materials*, Vol. 4, pp. 569~575.
- (7) Lee, J.M., Becker, M.F., Brock, J.R., Keto, J.W. and Walser, R.M., 1996, "Permalloy Nanoparticle Generated by Laser Ablation," *IEEE Transactions on Magnetics*, Vol. 32, pp. 4484~4486.
- (8) Becker, M.F., Brock, J.R., Cai, H., Henneke, D.E., Keto, J.W., Lee, J.M., Nichols, W.T., and Glicksman, H.D., 1998, "Metal Nanoparticles Generated by Laser Ablation," *Nanostructured Materials*, Vol. 5, pp. 853~863.
- (9) Kim, D., Ye, M., Grigoropoulos, C.P., 1998, "Pulsed Laser-Induced Ablation of Absorbing Liquids and Acoustic-Transient Generation," *Applied Physics A*, Vol. 67, pp. 169~181.
- (10) Park, H. K., Kim, D., Grigoropoulos, C. P. and Tam, A. C., 1996, "Pressure Generation and Measurement in the Rapid Vaporization of Water on a Pulsed-Laser-Heated Surface," *Journal of Applied Physics*, Vol. 80, pp. 4072~4081.
- (11) Jeong, S.H., Greif, R. and Russo, R.E., 1999 "Shock Wave and Material Vapour Plume Propagation During Excimer Laser Ablation of Aluminium Samples," *Journal of Physics D*, Vol. 32, pp. 2578~2582.
- (12) Callies, G., Berger, P. and Hügel, H., 1995, "Time-Resolved Observation of Gas-Dynamic Discontinuities Arising During Excimer Laser Ablation and Their Interpretation," *Journal of Physics D*, Vol. 28, pp. 794~806.
- (13) Lee, J., Becker, M.F. and Keto, J.W., 2001, "Dynamics of Laser Ablation of Microparticles Prior to Nanoparticle Generation," *Journal of Applied Physics*, Vol. 89, pp. 8146~8152.
- (14) Nichols, W.T., Keto, J.W., Henneke, D.E., Brock, J.R., Malyavanatham, G., Becker, B.F. and Glicksman, H.D., 2001, "Large-Scale Production of Nanocrystals by Laser Ablation of Microparticles in a Flowing Aerosol," *Applied Physics Letters*, Vol. 78, pp. 1128~1130.