《報文》 HWAHAK KONGHAK Vol. 20, No. 2, April 1982, pp. 133—142.
(Journal of the Korean Institute of Chemical Engineers)

온라인 분체입도측정장치의 개발을 위한 레이저광 회절분석의 실험적 연구

——이차원 모델입자의 경우——

강 석 호

영남대학교 화학공학과

(접수 1981. 11. 12)

Experimental Study on the Laser Diffraction Analysis for Development of an On-Line Particle Size Analyser

Suk-Ho Kang

Department of Chemical Engineering, Yeungnam University, Gyongsan 632, Korea

(Received; November 12, 1981)

요 약

광 회절을 이용한 분체 입도의 분석에 미치는 입자 변수의 영향을 조사하기 위하여 구형 및 사각형의 이차원 모델입자를 슬라이드 필름으로 사진촬영하여 레이저광 회절 실험을 시행하였다.
광회절 무늬에서 계산된 입자크기는 표준편차 1~15%의 범위 내에서 현미경 측정치와 일치하였다.
입자의 농도를 필름상의 면적비율로 정의하면, 광회절 무늬의 강도를 선명하게 식별할 수 있는 입자농도의 하한은 2% 이상 이어야 함이 밝혀졌다.
사각형 입자에 대한 분석 결과는 사각형의 가로의 길이에 가까운 상당크기로 표시되는 평균입자 크기를 계산할 수 있을 뿐이었다.

ABSTRACT

In order to investigate the influence of particle parameters on the evaluation of the light diffraction pattern analysis, 2-dimensional model particles were produced by photographing round particles and rectangular ones on the slide film respectively, and were experimentally analysed in the He-Ne laser diffraction system. The particle parameters were size, concentration, and shape of the particle images on the film. The results coincided with the

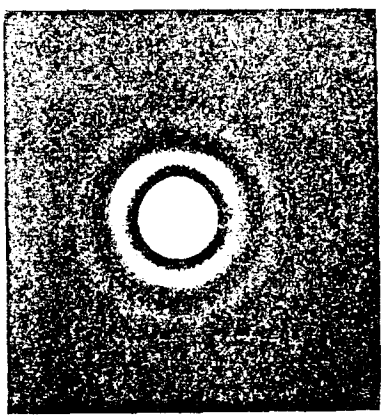
microscopic ones within the standard deviation of 1 to 15%
The particle concentration, defined as the ratio of the particle image area to the total slide area, was suggested to be above 2% in order to eliminate errors in analysing the intensity of the diffraction pattern. For rectangular particles, the evaluated equivalent size approached only to the width of the particle.

1. 서 론

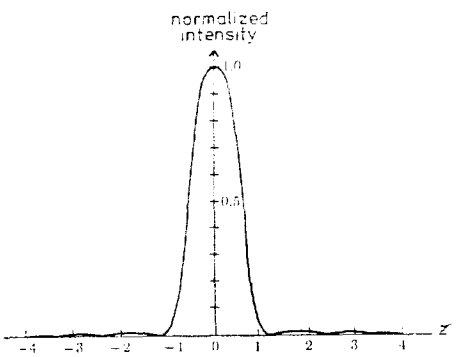
분체를 취급하는 공정에서 제품 및 원료 분체의 입도 및 그 분포는 가장 중요한 작업조건이다. 분체의 거동, 분체의 품질관리, 공정제어에 필요한 입도 및 그 분포를 신속히 측정하고 그 정보를 필요한 공정에 되돌려 보내서 원하는 입도 분포를 얻게된다. 이러한 과정을 신속히 또는 온라인 방법으로 달성하는 데는 광학적 측정법[3]이 다른 물리적 원리를 이용한 방법[1),2)]과 비교하여 가장 적당한 것 같다.

그 이유는 첫째, 분석시간이 짧고, 둘째, 분석된 데어터가 필요한 분체취급공정에 자동적으로 feedback 될 수 있고, 셋째, 시료채취과정을 생략할 수 있으므로 다상계 분체 시스템에 직접 측정장치를 설치함으로써 시료채취로 인하여 생길 수 있는 오차를 작게하고 취급공정내의 분체계에 아무런 변화도 일으키지 않는다. 여러가지 광학적 방법중에서 광회절법이 많이 쓰이는 이유는 안정된 단일파장의 레이저광원을 쉽게 얻을수있고 산란광의 측정이 보다 간편하고 쉽기 때문이다. 분체입도분석에 레이저광 회절원리를 이용한 지는 이미 오래되서 몇가지 상업적 장치[4),5),6)]도 시판되고 있으며 이 장치를 이용하면 상당히 정밀측정이 가능하지만 가격도 비싸고 진정한 의미의 온라인 공정제어 목적에 사용될 정도로 개발되어 있지는 않다.

이 연구에서는 2차원입자를 슬라이드 필름에 촬영한 모델시료를 사용하여 회절무늬의 분석에 관한 몇가지 기본 연구를 수행했다. 즉, 입자의 크기, 입자의 모양, 분산농도 등이 회절무늬를 해석하는데 어떤 영향을 미치는가를 조사하고 고찰하였다. 이 결과는 10~수백 μm정도의 지름을 가지는 기체 혹은 액체에 현탁된 분체의 입도를 측정할 수 있는 온라인 입도분석장치를 개발하기 위한 기초자료로 사용될 것이다.



(a) *Fraunhofer diffraction pattern of a circular aperture.*



(b) *Cross section of the Airy pattern.*

Fig. 1. Fraunhofer diffraction pattern and cross section of the pattern of a circular aperture

2. 이 론

어떤 단일 구형입자가 단색파장의 평행광선에 노출되면 몇개의 충첩되는 기하학적 회절 무늬

를 나타낸다. 만일 입자와 초점 사이에 렌즈를 설치하면 회절 안된 광선은 광축의 한점에 모이고 회절 광선은 에어리링 이라고 부르는 어둡고 밝은 여러개의 대칭원의 무늬를 나타낸다(*Fig. 1*). 이것을 far field 회절무늬라고 부르고 이 현상을 Fraunhofer 회절이라고 부른다. Fraunhofer 회절 무늬의 원형대칭성 명암의 강도분포 $I(s_0)$는 Fourier-Bessel 전환으로 다음과 같이 표시된다.[7]

$$I(s_0) = \left(\frac{A\pi x^2}{2\lambda f}\right)^2 \left[\frac{2J_1(\pi x s_i/\lambda f)}{\pi x s_i/\lambda f}\right]^2$$

$$= B\left[\frac{2J_1(z)}{z}\right]^2 \qquad (1)$$

제 1 차 Bessel 함수 $J_1(z) = 0$의 근 값, 즉 가장 어두운 위치는 $z_1 = 3.83$, $z_2 = 7.02$, $z_3 = 10.17$이되고 어두운 각 ring의 반경 s는

$$s_1 = 1.22\frac{\lambda f}{x}, \quad s_2 = 2.23\frac{\lambda f}{x}, \quad s_3 = 3.238\frac{\lambda f}{x} \qquad (2)$$

로 주어진다.

예를 들면, 초점거리 $f = 1000$mm인 렌즈의 경우, $\lambda = 0.6328\mu$m인 Ne-He 레이저광에 대하여 입도 $X = 300\mu$m의 구형입자는 $s_1 = 2.57$ mm에서, $s_2 = 4.70$mm에서, 그리고 $s_3 = 6.83$mm에서, 각각 어두운 링(최저 회절 강도)을 만든다. 달리 표현하면 인접한 최저 회절 강도 사이의 거리 $\Delta s_{01}, \Delta s_{12}$, 또는 Δs_{23}를 측정하면 다음과 같이 입도 x를 계산할 수 있다.

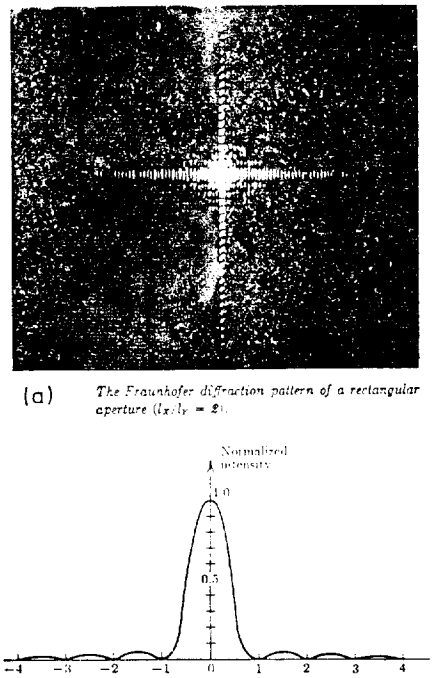
$$x = 3.83\lambda f/\pi\Delta s_{01} = 3.19\lambda f/\pi\Delta s_{12} = 3.15\lambda f/\pi\Delta s_{23} \qquad (3)$$

여기서 회절무늬의 반경은 원형 입자의 직경에 반비례하는 사실을 주의할 필요가 있다. 즉 작은 입자는 큰 반경의 회절무늬를, 큰 입자는 작은 반경의 회절무늬를 만든다.

다음에는 가로, 세로가 각각 l_x, l_y인 사각형 입자를 생각하자. *Fig. 2-a*는 단일 사각형 입자 ($l_x/l_y = 2$)의 회절무늬를 나타내는데 그 회절강도의 분포는 다음 식으로 표시된다.

$$I(x_0, y_0) = \frac{l_x^2 l_y^2}{\lambda^2 f^2}\sin^2\left(\frac{l_x s_{x0}}{\lambda f}\right)\sin^2\left(\frac{l_y s_{y0}}{\lambda f}\right) \qquad (4)$$

x_0 방향에서(수평축이라고 하자), 인접한 두 최저 강도점 사이의 거리 Δs_{ij}는 다음 식으로 표시



(a) *The Fraunhofer diffraction pattern of a rectangular aperture* ($l_x/l_y = 2$).

(b)

Fig. 2. Fraunhofer diffraction pattern and cross section of a rectangular aperture($l_x/l_y = 2$)

된다.

$$\frac{l_x\Delta s_{x01}}{\lambda f} = \frac{l_x\Delta s_{x12}}{\lambda f} = \cdots\cdots = \frac{l_x}{l_y} \qquad (5)$$

*Fig. 2-b*는 단일 사각형 입자의 Fraunhofer 회절무늬의 강도 분포의 단면도를 나타낸다. 그러나 불규칙한 모양을 가지는 입자의 경우나 또는 본 실험에서와 같이 동일한 크기를 가지는 많은 수의 사각형 입자가 임의의 방향에서 균등한 농도로 분산되어 있는 경우에는 회절무늬가 단일입자의 경우와 다르게 나타난다. 만일 입자들이 규칙적인 방향으로 배열되어 있다면 *Fig. 2-b*의 무늬가 규칙적인 배열을 하게될 것이다.

이 경우는, 예를들면, sieve의 눈을 검사하는 방법으로 쓰이는 경우이다. 그러나, 실제에 있어서, 구형 이외의 입자(불규칙 입자나 일정한 기하학적 모양을 가지는 입자)를 분석하고져 할 때 규칙적으로 배열될 수는 없다. 동일한 크기의 사각형 입자들이 시료대에 규칙적으로 배열되는 일이 없으므로, 얻어지는 회절무늬는 균일

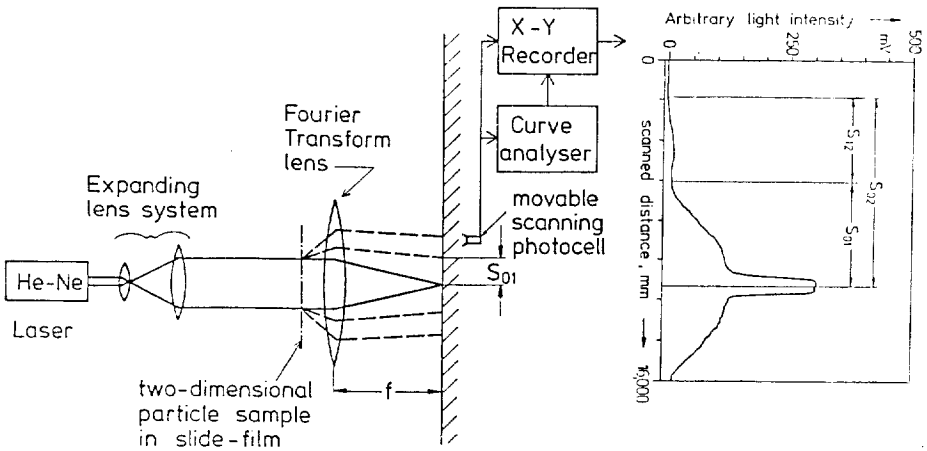


Fig. 3. Schematic diagram measuring the cross section of the Airy pattern of a given particle sample

한 구형입자의 회절 무늬와도 다르고 단일 사각형 입자의 회절무늬와도 다르다. 이러한 경우에는 회절무늬의 분석으로 계산되는 입도는 근사치를 줄 뿐이고 정확한 l_x, l_y의 값을 얻기가 어렵다.

3. 실 험

*Fig. 3*은 레이저광을 이용하여 회절무늬를 만들고 회절무늬의 단면을 측정하는 광학 시설의 개략도이다.

출력 5mW의 He-Ne레이저에 collimator를 포함한 확대 렌즈 시스템을 붙여서 평행의 단색 코헤런트광을 얻는다. 모델입자를 촬영한 슬라이드 필름을 5.5mm 직경의 광속 내에 수직으로 두어서 회절되는 광선을 초점거리 1000mm의 Fourier 변환렌즈를 통과시켜 초점평면에 모은다.

초점평면에는 직경 1.0mm의 pinhole을 가진 주사용 광전지(scanning photocell)가 고정된 수평 이동식 주사장치에 설치되었다. 회절강도는 mV 신호로 바뀌어 Hewlett-Packard 수치/아나로그 신호 분석장치에서 기록되고 관찰된다.

*Fig. 4-a, b*에 보는 바와 같이 회절광의 최하치를 식별하기에는 너무 약하므로 광전지와 *D/A* 신호분석장치 사이에 log-signal converter를 설치하여 최소치를 읽기 쉽도록 하였다.

회절현상은 불투명한 물체의 가장자리를 빗겨나가는 광선의 굴절현상인데 반투명 혹은 투명 물체에서도 일어나는 현상이므로 입자를 사진 필름에 옮긴 슬라이드 필름을 시료로 사용하기로 하였다. 모델입자가 촬영된 슬라이드 필름을 이용하는 경우에 몇가지 이점이 있다.

첫째, 모델입자의 모양을 임의로 만들어 낼 수 있어서 분체입자의 모양에 관한 연구에 계속 사용될 수 있고, 둘째, 슬라이드는 단일층을 이루므로 입자가 겹친 경우에 일어날 수 있는 복합분산효과를 없앰으로써 회절이론에 가장 적합한 시료가 될 수 있으며, 셋째, 시료 제작방법이 다른 방법(예, 진공증착, 몰딩—컷팅방법, 시료 유리판에 분체를 부착하는 방법 등)보다 간단하다.

모델분체시료는 다음과 같이 제작되었다. 지름 1.25mm의 흰종이 알맹이를 크고 검은 종이 위에 중첩없이 균일하게 분산시켜 필요한 축소 스케일로 사진촬영하였다. 사각형입자의 경우에는 3.20 × 1.45mm의 종이 알맹이들을 사용하였다(*Fig. 5*). 사용한 필름은 Agfaortho 25의 기록용 필름이다. 필름 생산과정에서 사용되는 광활성 할로겐은 입자는 1μm 이하이므로 파

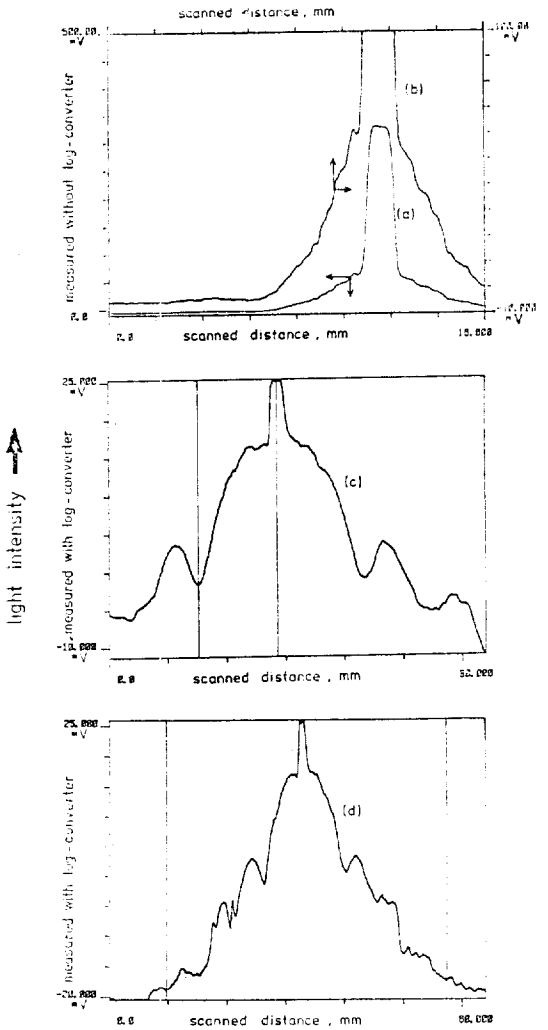


Fig. 4. Some examples of cross-section of the diffraction pattern of round particles of 100μm diameter by the curve analyser coupled without a log-converter (a,b), and with a log-converter (c,d)

장 0.6328μm 인 He-Ne 레이저광의 회절무늬에는 영향[8]을 주지 않는다고 가정하였다.

4. 결과와 검토

회절무늬의 단면도(*Fig. 4-c*)에서 초점과 첫 최소점과의 거리 Δs_{01}, 첫 최소점과 다음 최소점간의 거리 Δs_{12}…… 등을 계속 읽을 수 있고 읽을 수 있는 가능한 Δs_{01}, Δs_{12}, Δs_{23} 를 읽으면 식(3)을 이용하여 구형입자의 입도 x를 계산할 수 있다. 일회의 주사에서 작은 입자의 경우 Δs를 4개, 큰 입자의 경우 10개의 Δs를 읽을 수 있는데 동일한 크기의 입자들에 대한 회절무늬에 있어서는 이론상으로(*Fig. 1 a, b*) 각 Δs가 같은 값을 가져야 하나 실제로는 Δs가 꼭 같지 않기 때문에 계산된 입도 x는 1회의 주사 결과로는 상당히 분산된 값을 준다. 따라서 1회의 주사에서 얻은 4~10개의 data를 평균하여 모델입자의 직경을 계산하고 현미경측정결과와 비교하였다. *Fig. 6*에는 두 방법으로 측정된 모델입자의 입도를 상관관계로 나타냈는데 현미경 측정치는 오차분포가 2% 이내 인데 반하여 회절 데이터로부터의 계산치는 오차의 분산이 더욱 크다. 두측정치의 분산 분석결과에 의하면 95% 확률범위에서 두 방법으로 측정된 결과가 차이가 있음을 나타냈다.

회절분석치가 더 큰 오차분산을 가지는 이유는 이론상으로 Δs가 등간격의 값을 주어야 하는데 실제로 그렇지 못한 점에 기인한다. 그러나 이 정도의 오차는 다른 연구결과에서도[9] 일어날 수 있는 측정기술상의 오차라고 할 수 있다. *Fig. 7*에는 계산된 입자 크기들의 표준편차에 대한 모델 입자 크기의 영향을 표시한 것이다. 동일한 측정 방법이 적용될 때 작은 측정치가 큰 측정치 보다 더 큰 상대오차 또는 표준편차를 주는 것은 당연하다. 즉 동일 배율의 현미경으로 관찰되는 경우에 100μm 입자의 평균 측정오차가 2%이며 300μm 입자의 편차가 0.8% 되는 것은 당연한 일이다. 그런데 모델 입자의 회절에 의한 입도 측정치는 100μm 의 경우 15%의 상대오차, 300μm 의 경우 2% 정도의 상대오차를 주어서 회절 원리에 의한 측정이 부정확함을 인정해야 한다. 여기서 생기는 문제는 만일 실제 분체 입자가 100μm 또는 10μm 입도인 경우에 그 부정확성은 더욱 증가할 것이라는 것을 예상할 수 있다.

본 실험에서 입자의 농도는 2차원적으로 다음과 같이 정의한다. 즉, 전체 슬라이드 면적에 대한 모델 입자의 면적비를 입자 농도로 정의한

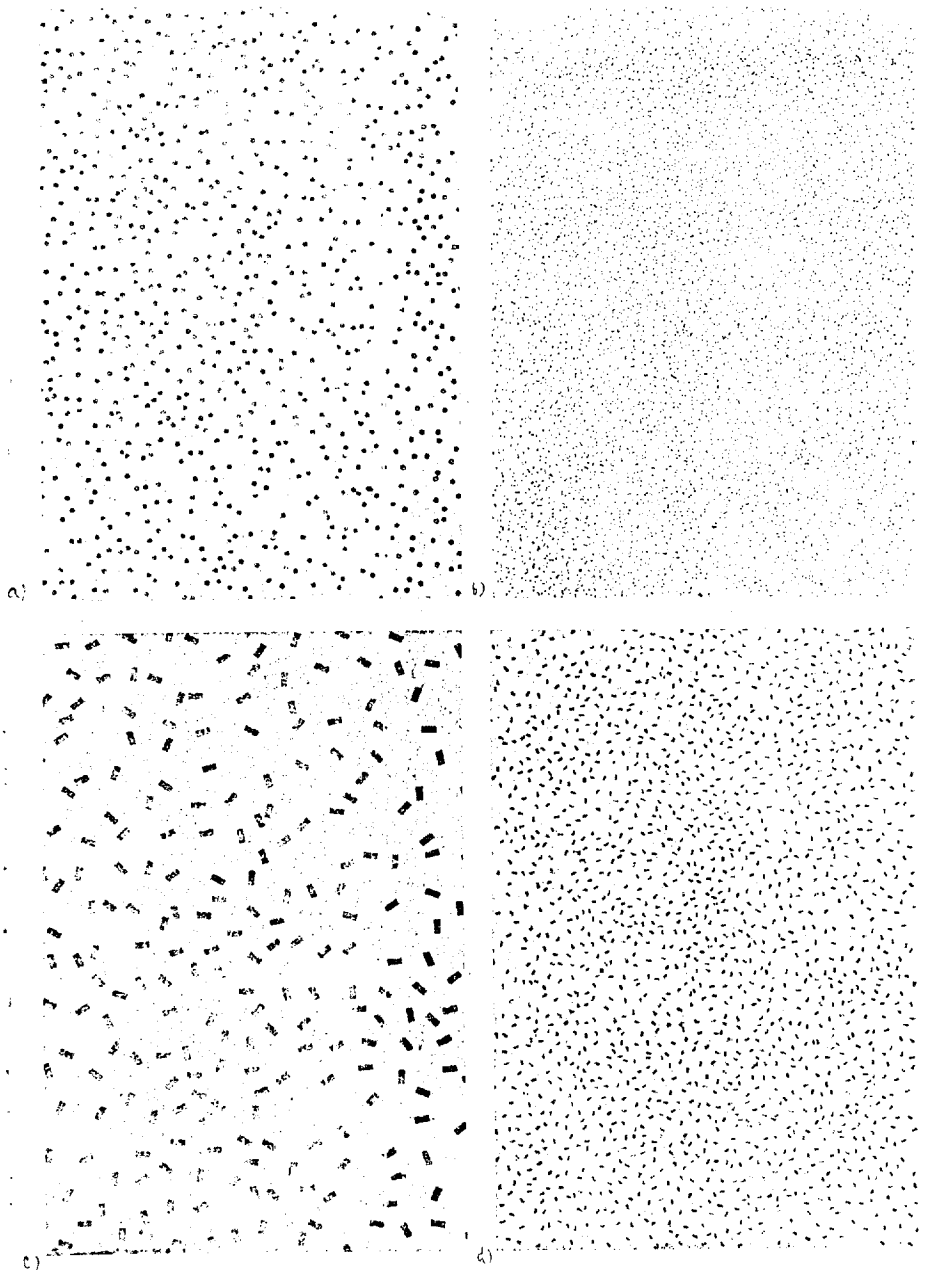


Fig. 5. Photographic views of some particle samples
a) roundparticle 10/7000, b) 30/7000, c) rectangular particle 10/2000, d) 30/2000

다. 입자가 균일하게 전 면적에 분산되어 있으므로 투사광선이 통과하는 필름 부분의 입자농도는 역시 일정하다. 입자 농도가 0.1에서 0.02 정도로 떨어지면 초점평면에 나타나는 회절무늬는 육안으로 판별될 수 없을 정도로 아주 약화된다. 따라서 강도의 최저점을 읽기도 어려워지고 계산된 결과도 상당히 부정확하게 된다. 입자 농도가 회절현상에 미치는 영향, 즉 회절에 의한 입도 계산치 등의 편차에 미치는 농도의 영향을 *Fig. 8*에 표시하였다. 이 그림은 측정치

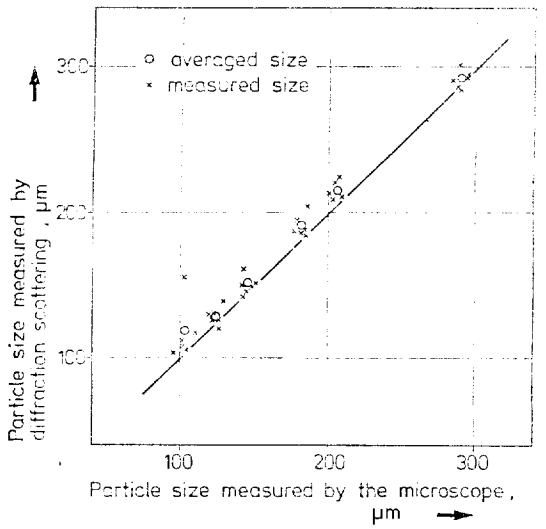


Fig. 6. Comparison of the particle sizes measured by the diffraction pattern analysis and by the microscope

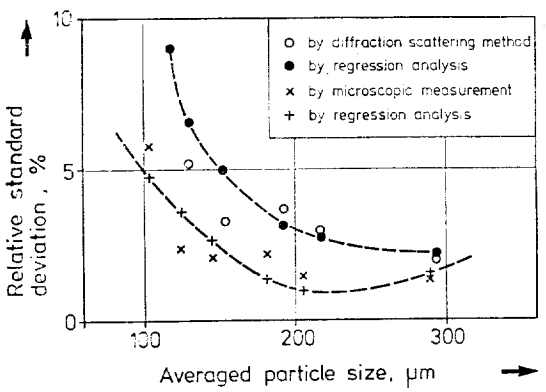


Fig. 7. Influence of the particle size on the measurement accuracy in % standard deviation

가 농도에 따라서 분산된 정도를 이해하는데 적당한 수단을 제공한다. 개별적 측정치가 평균치로부터 벗어나는 정도가 저농도에서 매우 크고 고농도에서 매우 작음을 볼 수 있다. 즉, 1% 농도에서 7개중 4개의 측정치가 95% 신뢰구간에 들어있는데 반하여, 10% 농도에서는 7개중 6개의 측정치가 같은 구간에 들어있다. Felton[10]의 연구에 의하면 광선의 가림(light obscuration)과 측정된 평균입도의 오차분산은 서로 관계가 있음을 45.4±8.9μm의 Dow-latex 球로서 증명하였다. 이 경우에 광선의 가림의 상한농도로써 50% 이상이면, 입자의 중첩회절로 인하여 회절원리를 이용할 수 없다고 한다. 그리고 하한으로는 5~10%의 가림에서 측정치의 변동은 별로 크지 않다(즉, 편차가 작다)고 보고하였다. 그러나 본 실험에서는 *Fig. 8*에서 보는 바와같이 2차원 입자의 평균입도는 농도 0.1~0.01 범위에서 크게 분산됨을 볼 수 있다. 이 현상은 침강법을 이용하여 보통 1% 이하의 희석농도에서 구형입자의 분체입도를 측정하는 경우와는 대조적이다.

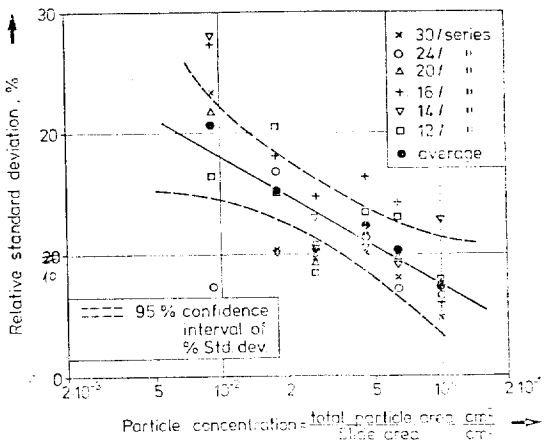


Fig. 8. Dependence of the measurement accuracy on the particle concentration

따라서 광회절 원리를 이용한 입도분석에서 신뢰할만한 결과를 얻기에 적당한 면적의비로 정의된 입자농도의 하한은 2% 이상이라고 주장할 수 있다.

본 실험에서 농도 0.0045의 모델입자도 측정되었으나 입도를 계산할 수 있을 만큼 선명한 회절무늬를 얻을 수가 없었다. 실제 분체를 이용하는 경우에도 분체농도가 묽으면 회절분석은 어려울 것이나 이 경우에는 보다 큰 출력의 광원을 사용해야 할 것이다.

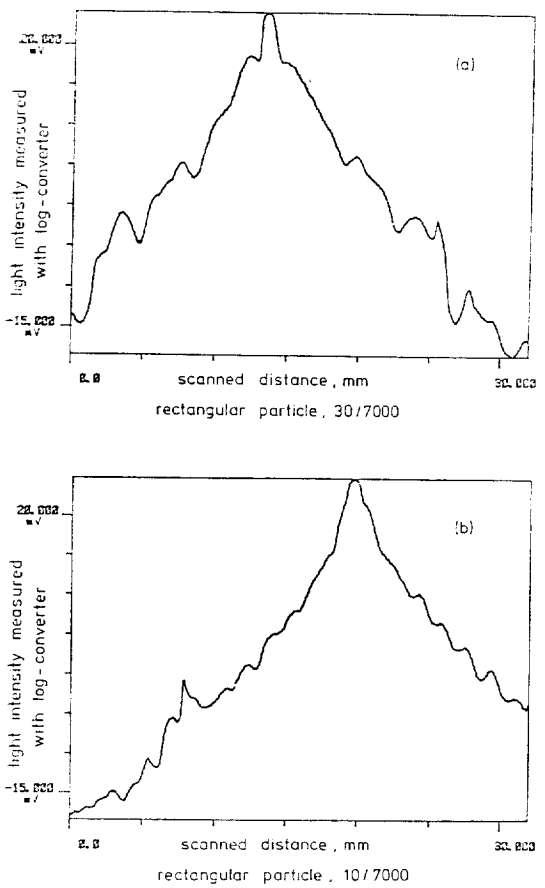


Fig. 9. Cross section of the Fraunhofer diffraction pattern of rectangular particle a) $262 \times 121\mu m^2$, b) $745 \times 332\mu m^2$

비구형 입자의 회절에 관한 지금까지의 연구는 상당히 드문데, 다만 유사 구형 단일 입자의 회절에 관한 이론적 연구는 있다.[11),12)]

임의로 분산된 2차원의 사각형 모델입자의 회절무늬에 대한 연구는 지금까지 발표된 바 없는데, 매우 흥미있는 연구 과제라고 생각된다. 즉, 임의 방향으로 불규칙하게 배열된 사각형 입자들의 film에서 얻는 회절무늬는 단일 사각형 입자의 회절무늬(*Fig. 2-a*)와 단일 원형 입자의 회절에 의한 에어리링(*Fig. 1-a*)과의 복합무늬로 나타난다(*Fig. 9*). 이 무늬에서는 명확하게 식별할 수 있는 최저강도의에 최저점 사이마다 1~2개의 변곡점이 관찰된다. 이 변곡점은 사각형입자의 가로, 세로 길이 l_x, l_y가 동일하지 않기 때문에 일어나는 현상이다. 즉, $l_x=l_y$의 정사각형 입자라면 변곡점은 나타나지 않을 것이다. 그리고 이때 최저점 간의 거리는 정사각형 입자의 입도에 상당하는 상당직경을 얻을 수 있을 것이다. *Fig. 9-b*의 경우에는 변곡점을 식별할 수가 없다. 이 경우에 물론 최저점간의 간격을 측정함으로써 사각형입자의 상당직경은 계산이 가능한데 이 상당직경은 사각형입자의 어느 한 쪽 길이 l_x, 또는 l_y와 일치하지 않고 다만 l_x와 l_y의 중간치로서 l_y에 더 가까운 값이다. 만일 변곡점이 관찰되고 그 변곡점이 사각형의 한 변 l_x(긴쪽)에 연유하는 최소점을 나타낸다고 가정하면 이 값은 l_x값에 가까운 값이 된다. 그러나 이 측정은 30/series의 모델입자, 즉 모델입자가 100μm의 입도를 가질 때만 가능하고 입자가, 큰 20/series, 10/series의 경우에는 변곡점 식별이 어려워지므로 계산도 불가능해 진다 (*Table 1*, *Table 2*).

5. 결 론

레이저광 회절원리를 이용하여 원형 및 사각

Table 1. Sizes of round particle, x_s, evaluated by the microscopic method and by the diffraction analysis.

method \ sample	30/series	24/series	20/series	16/series	14/series	10/series
by microscope (μm)	103.2±6.5	124.5±3.3	145.6±3.7	181.2±4.2	205.7±3.7	289.2±4.8
by diffraction, x_s,(μm)	118.0±20.0	129.7±6.7	152.9±5.0	192.3±7.1	216.7±6.4	292.6±5.9

Table 2. Sizes of rectangular particle evaluated by two methods

method \ sample		30/series	24/series	20/series	14/series	10/series
by microscope (μm)	length	261.7±6.7	322.4±6.3	386.8±5.5	536.3±14.6	744.8±5.1
	breadth	121.1±5.8	154.2±2.2	173.5±8.7	244.4±12.6	332.3±10.2
by diffraction (μm)		141.9±7.1	170.7±16.2	208.9±20.9	273.0±19.1	346.7±14.1

형 입자를 슬라이드 필름에 촬영한 모델 입자의 입도를 분석하였다. 회절원리를 이용한 측정 데이터는 현미경 측정 데이터보다 덜 정확한 결과를 주고 개개의 측정치는 평균치로부터 더 많이 이탈한다. 그 이유는 회절 광선의 강도분포, 특히 최하 강도가 이론적으로 기대되는 완전한 대칭으로 나타나지 않기 때문이다. 특히 모델입자의 농도가 낮은 경우에 회절광의 강도가 최저가 되는 위치를 결정하기가 어렵기 때문에 측정치에 큰 오차가 초래된다.

따라서 회절원리를 이용한 2차원원형입자의 입도의 분석에서는 광원에 조사되는 분체의 농도가 최저 2% 이상은 유지되어야 한다는 결론을 얻었고 이것은 침강법이나 공기풍사법에 의한 구형입자의 분체 입도분석에 의한 결과보다 더 정확한 측정결과를 얻을려면 1% 이하의 희박 농도가 요구되는 사실과는 반대 현상이다.

비원형 입자의 입도측정에서는 상당직경 만을 구할 수 있을 뿐이고 사각형 입자와 같은 예에서는 가로/세로의 비, 즉, aspect ratio의 회절무늬에 미치는 영향을 계속 조사할 필요가 있다.

감 사

본 연구는 문교부의 IBRD 차관에 의한 공대교수 해외파견연구계획하에 서독 클라우스탈 공과대학에서 이루어진 것임을 밝히면서 관계기관 및 연구에 협조해주신 여러분께 감사를 드리는 바이다.

References

1. K. Leschonski, Die On-Line Verfahren der Teilchengrößenanalyse, Dechema Monographien, Bd. 79/B, (1975), 21/38.
2. C. Orr, Jr., Particle size characterization-A review of recent technology, Particle Size Analysis, ed. by M. J. Groves, Heyden & Sons GmbH, Rheine, West Germany, (1978), 77/100.
3. G.F. Hewitt, and P.B. Whalley, Int. J. Multiphase Flow, **6**(1980), 139.
4. J. Cornillaut, Appl. Opt., **11**(1972), 265.
5. J. Swithenbank, J.M. Beér, D.S. Taylor, D. Abbot, and O.C. McCreath, A laser diagnostic technique for the measurement of droplet and particle size distribution, Progr. in Astronautics and Astronomy, Bd. 53, ed. by B.T. Zinn, (1977), 1/10.
6. E.L. Weiss, and H.N.Frock, Powder Techn., **14**(1976), 187.
7. J.W. Goodman, Introductionto Fourier Optics, McGraw-Hill Book Co., New York, 1968, p. 57.
8. M. Kerker, The scattering of Light and other Electromagnetic Radiation, Academic Press, New York, 1969, p. 311.
9. R.A. Dobbins, L. Crocco, and I. Glassman, J.Am. Inst. Aeron. Astronaut., **1**(1963), 1882.
10. P.G. Felton, International Symposium. Bergen, Norway on 22-23rd. Aug. 1978.
11. S. Asano, Appl. Opt., **18**(1979), 712.
12. A.G. Naylor, and C.D. Wright, Shape analysis of particle profiles using the Fourier transform, Particle Size Analysis, ed. by M.J. Groves, Heyden & Sons GmbH, Rheine, West Germany, (1978), 110/19.