

# 레이저를 이용한 연소진단 기술

한재원, 박승남, 박철웅, 이은성, 이병준

한국표준과학연구원 양자연구부 고온광계측 그룹

대전시 유성구 유성우체국 사서함 102, 305-600

레이저 계측기술의 일반적인 장점인 비접촉방식에 의한 측정 가능, 측정의 정밀 정확도 향상, 높은 검지도 등의 장점으로 연소현상을 진단하기 위하여 여러 가지 레이저 계측기술이 사용되고 있다. 레이저를 이용한 연소진단 기술 중 가장 널리 사용되고 있는 CARS, 레이저 형광유도 기술, 축퇴사광과 혼합기술에 대한 연구를 수행하였다. CARS 기술은 관련 측정기술과 실제 화염의 구조를 분석하는 응용연구를 하였으며, 산업적인 용용을 위한 장비를 개발하였다. 그리고, 레이저 형광 유도 기술을 적용하여 화염내부에서의 OH 농도를 측정하였다. 최근 활발히 연구되고 있는 축퇴사광과 혼합기술을 이용한 연소기체 진단법을 연구하기 위하여, 분광기를 구성하고 화염 내에서 OH 농도를 측정하여 레이저 유도형광법으로 측정한 결과와 비교 하여 서로 일치하는 결과를 얻었다.

## I. 서 론

레이저를 응용한 연소진단기술은 물리학의 연구분야인 레이저 분광학과 기계공학에서 연구분야인 연소공학이 서로 만나는 경계 영역에서 매우 활발하게 연구되고 있는 최신의 연구분야 중 하나이다. 특히 비선형 레이저 분광기술이 연소진단기술에 응용되면서 이러한 연구분야에서 물리분야와 기계분야의 공동연구의 영역이 더욱 확대되었으며, 서로의 연구영역에 대한 이해와 연구의 필요성에 대한 공감대를 절실히 느끼게 되었다. 최근들어, 연소상태에서 배출되는 유독기체들에 의한 대기오염이 심각성과, 에너지 절약을 위한 고효율 열기관 개발 및 대기오염을 줄일 수 있는 깨끗한 연소 문제가 중요한 사회문제로 부각되고 있다. 이에 따라 분광학 연구자들에 의한 연소진단을 위한 레이저 분광기술연구와 연소 연구자들에 의한 레이저 기술을 응용한 연소진단연구가 활발하게 진행되고 있다.

본 글에서는 연소진단에 사용된 여러 가지 레이저 기술 중 대표적인 것으로 CARS (coherent anti-Stokes Raman spectroscopy), 레이저 유도형 광(LIF: laser induced fluorescence), 축퇴사광과 혼합 (DFWM: degenerated four wave mixing) 기술에 대하여 간략히 언급하고 최근 연구에서 문제가 되고 있는 여러 가지 사항에 대하여 논의하고자 한다.

## II. CARS

### 2-1. 원리 및 기술 개요

프랑스의 Taran 등<sup>[1]</sup> 이 농도 측정에 응용하고 난 후 그 응용범위가 급속히 넓어져 이제는 고온기체의 온도 및 밀도를 측정하는 고전적인 기본기술의 하나로 확립되었다. CARS는 매질의 라만편이의 파장 차이를 가진 두 가지 레이저 광을 렌즈로 집사시켰을 때 두 레이저 광이 만나는 렌즈의 촉점에서 신호가 발생되므로 뛰어난 공간분해능을 가지고 있으며, 온도측정의 정확도도 매우 높다.<sup>[2]</sup> 현재까지 연구된 결과에 의하면 약 1 mm 이내의 공간분해능으로 연소기체의 공간적인 온도분포를 측정할 수 있으며, 온도측정의 정확도는 4000 °C 정도의 고온 기체에서 5 % 이내이다. 농도 측정의 경우 다른 기체와 섞여 있을 때 그 농도가 상온에서는 0.1 % 이상, 1500 K 이상의 고온에서는 0.3 % 이상이면 측정이 가능하다. 그리고 저밀도 플라즈마 상태인 경우 절대 압력이 0.1 Torr 정도의 기체 검출이 가능하다. 뿐만 아니라 발생된 CARS 신호와 시료에 입사된 펌프광과 스톡스광은 서로 파장이 시료의 라만편이 만큼씩 다르므로 분리가 용이하고, 발생된 CARS 신호는 위상정합조건을 만족시키는 방향으로 유도증폭(stimulated amplification)되어 발생하므로 레이저와 같이 직진성을 가지고 있다. 따라서 측정장치를 시료와 먼곳에 둘 수 있어서 시료에서 발생되는 배경잡음의 영향을 줄일 수 있는

장점을 가지고 있다.

이러한 CARS 기술은 안정된 화염의 구조를 연구할 수 있을 뿐만 아니라, 레이저 펄스 마다 전체의 스펙트럼을 얻을 수 있는 광대역 CARS 기술을 사용하면 측정의 시간분해능을 높일 수 있으므로 난류연소처럼 온도가 급격히 변하는 연소상태의 진단에도 유용하게 사용되고 있다.

## 2-2. CARS 연구의 연구현황 및 연구주제

CARS에서 최근 까지 집중적으로 연구되어온 연구의 내용의 핵심은 CARS 분광선의 모양으로부터 온도와 압력의 정보를 계산하는 것이다. 이를 위하여 온도 및 압력 변화에 따른 CARS 분광의 모양을 이론적으로 계산하기 위하여 여러 가지 실험과 이론적인 연구가 수행되었으며, 질소분자에 관한 실험과 이론적인 연구는 온도분야 2000 °C 이하에서는 거의 마무리 되었으며, 기압은 100 기압까지 연구가 수행되었다.

CARS 기술의 응용은 레이저 펄스 마다 CARS 분광선을 측정할 수 있는 광대역 CARS 기술이 개발되면서 용용의 범위가 확장되었다. 이러한 광대역 CARS 기술을 기초로한 CARS 장비가 개발되어 실제 연소장의 측정에 널리 활용되고 있으며 본 연구실에서도 최근 광대역 CARS 장비를 연구 개발하여 연소 연구에 응용하고 있다. 본 연구실에서 제작된 CARS 장비의 개략도가 그림 1에 그려져 있다.

CARS 연구의 최근 주제는 충격파 연구를 위해 수천 기압의 분위기에서 압력과 온도를 측정하는 것과, 로켓트의 분사기체 온도를 측정하기 위해 수소기체의 CARS 분광선으로부터 온도측정하는 것이다. 특히 이러한 수소분광에서의 광대역 CARS 분광선으로부터 정확한 온도를 측정을 위하여는 분광분포가 안정된 색소레이저를 분광기의 스톡스 광으로 사용하여야 한다. 이를 위하여 무모드 색소레이저가 연구되고 있는데, 분광분포의 시간변화가 적고 동작이 안정된 무모드 색소레이저의 연구가 중요한 연구주제로 부각되고 있다. 그림 2에 본연구실에서 연구된 무모드 색소레이저가 그려져 있다. 이 레이저는 증폭된 자발광(amplified spontaneous emission)으로 동작되는 무모드(modeless) 레이저이며, 장치의 구성이 간단하고 출력분광의 모양이 매우 안정적인 것이 특징이다.

## III. 레이저 형광 유도 (LIF)

### 3-1. 원리 및 기술 개요

형광은 광자 또는 원자, 분자가 충돌에 의해

여기된후 에너지 상태가 변하면서 방출하는 자발방출(spontaneous emission)이다. 레이저 광을 흡수하여 여기된후 자발방출에 의하여 형광을 내는 것이 LIF이다. 이러한 LIF는 감도가 좋고 검사체적을 줄일 수 있고 ( $O(1\text{mm}^3)$ ), 점측정이 가능하다. 또한 신호의 크기가 커서 2차원 영상을 얻을 수 있다.

LIF 실험을 하기 위하여는 측정하고자 하는 분자나 원자의 자발광 스펙트럼이 알여져 있어야 하고, 이 원자나 분자의 흡수 파장의 레이저가 있어야 하고, radiative decay 율이 알려져 있어야 하며, 발생한 LIF 신호의 크기가 측정 가능한 정도 이어야 한다.

OH 라디칼은 거의 모든 화염과 관련된 중간생성물로, 화염내의 다른 라디칼에 비하여 많이 존재하며, 서로 분리되는 많은 rotational line을 가지고 있고, 고온에서의 에너지 준위, 복사천이, 소광(quenching) 천이율에 대한 정량화된 정보가 많이 존재하기 때문에 널리 연구되고 있다. 또한 OH 라디칼은 반응 면에서 볼때  $\text{H} + \text{O}_2 \rightarrow \text{OH} + \text{O}$  와  $\text{O} + \text{H}_2 \rightarrow \text{OH} + \text{H}$  의 반응으로 생성되어 탄화수소계 연료분자로부터 H원자를 떼어냄으로써 연료의 산화를 시작하는 역할을 한다. 또한 일산화탄소의 주된 산화반응인  $\text{OH} + \text{CO} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}$  반응을 일으키며, 확장된 Zeldovich 메카니즘으로 알려진  $\text{N} + \text{OH} \rightarrow \text{NO} + \text{H}$  반응으로부터 공해물질인 NO의 생성에 직접관여하고 매연 입자의 주된 산화체로 작용하므로 많은 연구가 이루어져 왔다.

이러한 OH나 H, O 등의 라디칼 농도의 측정은 기존의 장비나 방법으로는 불가능하고, 레이저를 이용한 레이저흡수법(Laser absorption technique), 레이저 형광 유도법(laser induced fluorescence, LIF)이나 DFWM에 의하여만 측정 가능하다. LIF법은 기저상태에 있는 분자들이 레이저 광을 흡수하여 여기된 후 다시 자발방출(spontaneous emission)하는 빛을 분석하여 OH, NO, CH, CN, NH, HCO 등의 라디칼 농도 계측 및 온도계측에 이용된다. 이러한 LIF법은 연소진단의 필수적인 도구로서 쉽게 활용될 정도로 널리 보급된 실험기법으로 그 용용범위는 연소분야의 기초연구, 배기 오염물질의 측정, 평면화염버너, 난류 확산화염 연구, 매연 입자와 관련된 연구, 디이젤엔진 내의 분무화염에서의 OH 농도 측정, 가솔린 엔진 내의 혼합기 분포측정등에 용용되고 있다.<sup>[3]</sup>

레이저 유도 형광법을 이용한 화염중의 OH 농도측정을 위한 실험장치는 크게 자외선 레이저 생성부, 수광부 및 버너로 구성되어 있다. (그림

### 3 참조)

자외선 레이저 생성부는 7~8 ns 펄스폭,  $0.05 \text{ cm}^{-1}$ 의 선폭을 가진 Q-스위치된 Nd:YAG 레이저(Quentel, 660-10)과 색소레이저(Lumonics) 및 KDP 결정에 의한 주파수 배가기로 구성되어 있다. 색소 레이저는 메탄올에 R590 ( $2 \times 10^{-4}$  몰농도) 을 용해시킨 염료를 사용하는 공진기와 R590(BF<sub>4</sub>) ( $1 \times 10^{-4}$  몰농도) 색소를 사용하는 2단 증폭기로 구성되어 있다. Nd:YAG 레이저의 2차 고조파인 532nm의 파장 (75mJ/pulse) 이 색소레이저의 공진기에 의해 파장선택이 된 후 증폭기에 의해 증폭된 후 (553~570 nm, 16 mJ/pulse) 주파수 배가기에 의하여 277.5~285 nm (25 μJ/pulse)의 자외선 레이저를 생성한다.

발생된 레이저는 촛점거리 200 mm의 렌즈를 사용하여 버너의 중심축에 집광시킨다. 이때 발생된 LIF 신호는 촛점거리 125 mm인 직경 50.4 mm의 렌즈로 수광부인, 0.1 nm분해능(@20μm 슬릿), f/3.9, 1200 groove/mm의 단색기(monochromator, DK 240, CVI)의 입사슬릿에 물체와 상의 크기가 동일하게 맷히도록 하였다. 단색기에서 파장 선택이된 LIF 신호는 출구에 설치된 광증배판에 의해 전류로 변환되고, 이 변환된 전류는 전류 전압 변화기에 의하여 전압으로 변환되어 BOXCAR에서 A/D 변환을 하여 개인용 컴퓨터로 신호를 처리하였다.

실험에 사용한 버너는 대향류 버너로서, 노즐 출구에서 균일한 유동장을 얻기 위하여 단면적비가 80:1인 직경 14.2 mm의 수축 조를 두개를 14.5 mm 간격으로 상하 대칭으로 마주보게 위치시켜 대향류를 형성하였다. 노즐 주위에는 직경 16 mm의 동축 노즐을 장치하여 그 틈새로 질소를 분출시켜 외부 공기의 영향을 차단하였으며 노즐 주위에 냉각수관을 두어 과열을 방지하였다. 이러한 대향류 버너에서 얻어지는 화염은 상하 노즐에서의 속도와 농도에 따라 화염이 하나에서 세개까지 형성되고, 이때 형성되는 화염이 평면화 염이고, 유동장에 대한 상사해가 존재하므로 이론적 수치해석 결과에 용이하여 화염의 상호 작용 연구에 널리 이용된다.

그림 4는 대향류 유동장 중심축상의 LIF 신호 크기와 41개의 반응단계와 18개의 화학종을 고려한 Peters 단축메카니즘을 사용하고, 물성치와 전달계수는 CHEMKIN과 TRANSPORT Package를 이용한 수치해석 결과를 나타낸다. 수치해석 결과와 LIF 신호 크기의 경향이 서로 일치함을 볼 수 있다.

### 3-2 LIF 연구의 연구현황 및 연구주제

LIF 기술의 정확도는 여러개의 여기된 에너지 준위에서 자연친이되어 방출되는 광의 세기의 비에서 온도를 구하거나, 하나의 에너지 둘뜬 에너지 준위에서 방출되는 자연친이 광의 세기에서 측정대상 기체종의 농도를 구한다. 이러한 과정에서 여러개의 둘뜬 에너지 준위에서 자연친이되지 않고 소광(quenching)에 되는 물이 서로 다르면 온도측정에 오차를 발생시킨다. 그리고, 같은 에너지 준위에서도 주변기체의 종류, 압력, 온도에 따라 소광률이 다르면, 농도측정에도 오차를 유발한다. 따라서 LIF 연구에서는 둘뜬 에너지 준위에서 소광률에 대한 연구가 최근까지 활발하게 연구되고 있는 연구주제 중 하나이다.

이러한 소광에 의한 영향을 줄이기 위하여 둘뜬 에너지 준위에서 선해리(predisociation)이 일어나는 것을 찾아서 LIF 실험을 함으로써 소광이 되기 이전 둘뜬 상태의 농도에 비례하는 LIF 신호를 얻는 연구도 진행되고 있으나, 신호의 세기가 크게 줄어서 측정의 감도가 떨어지는 단점이 있다. 아울러 LIF 기술을 이용하여 화상데이터를 얻는 연구도 응용분야에서 활발히 진행되고 있으며, 이러한 화상데이터에서 여러 가지 측정정보를 구하는 연구도 함께 진행되고 있다.

## IV. 축퇴사광파 혼합 (DFWM)

### 4-1. 원리 및 기술 개요

DFWM의 경우는 CARS보다 늦게 연소진단기술에 도입되었지만<sup>[4,5]</sup> 신호대 잡음비가 매우 높아 미량의 작은 원소도 검출할 수 있다. 단일 파장의 빛을 이용하기 때문에 레이저광들을 어떠한 기하학적 형태로 정렬해도 쉽게 위상정합조건을 만족시키게 된다. 따라서 특정한 위상정합조건을 사용하면 텁사광에 대해 위상공액인 신호를 만들 수 있고 이를 통해 측정표적 이미지를 회복하여 원소들의 공간적인 분포를 한 순간에 알 수 있다. 화염내에서 연소반응중에 생성되는 중간생성물인 OH 라디칼의 분포를 측정할 수가 있다.

DFWM 기술은 측정의 감지도(sensitivity)가 매우 높아서 CARS로 측정할 수 없었던 연소기체 내부의 미량생성 기체의 농도를 측정할 수 있다. 또한 간섭성/직진성의 레이저 신호를 얻을 수 있으므로 신호에서 발생되는 잡음의 영향을 줄일 수 있는 장점이 있다. 이러한 장점으로 CARS 기술과 상호 보완하거나 대체하는 기술로 주목을 받고 있으며, 최근 여러연구자들에 의해 활발하게 연구되고 있다.

본 연구에서는 CARS 이후 새로운 연소진단

기술인 DFWM을 소개하고 그 가능성을 조사해 보았다. 대향류버너의 화염에서 OH 라디칼의 X-A 전자에너지 천이 중  $R_1(0,0)$  천이선들의 DFWM 스펙트럼을 측정하고 이로 부터 온도를 계산해 내었다. 또한 버너의 축방향으로 여러점에서 스펙트럼을 얻어 OH 라디칼의 상대적인 분포를 확인하였다. 이렇게 얻은 온도와 농도의 분포를 수치해석적인 방법으로 얻은 결과와 비교해 보았다.

전체적인 실험구성은 LIF 실험에서 사용한 장치와 광원 부분은 같으며, 관련 장치의 개략도가 그림 5에 그려져 있다. OH 라디칼의  $R_1$ -가지는 306nm 근처에 존재하므로 실험에 사용할 광원은 자외선영역이다. DFWM 신호생성을 위한 위상 정합조건은 접혀진 상자형태이었으며, 펌프광, 텁사광, 신호광이 모두 전방으로 진행하므로 forward DFWM이라고 부른다. 렌즈1에 입사하기 전 각입사광들간의 거리는 5 mm 정도로 유지하였고 렌즈의 초점거리는 200 mm이다. 이렇게 생성된 DFWM 신호는 공간필터를 통하여 배경잡음을 충분히 제거하고 난 후 집광거울을 통하여 직경 200  $\mu\text{m}$ 의 광섬유에 들어가게 된다. 공간필터에 사용한 펀홀의 크기는 500  $\mu\text{m}$ 이다. 광섬유를 통과한 후에도 계속 따라 오는 다른 광장의 빛을 제거하기 위해 단색화장치(Jobin Yvon THR1000)를 사용하였다.

버너의 각 위치에서 얻은 온도값과 OH 농도의 측정결과가 그림 6에 그려져 있다. 4.75 mm 이하의 위치에서는 OH 라디칼의 농도가 매우 희박하여 온도를 구할 수 없었다. DFWM을 통해 얻은 온도값을 CARS로 구한 온도와 비교했을 때 2000 K에서 약 10 % 이내에서 일치함을 볼 수 있었다. DFWM 온도가 약간 더 높게 나온 이유는 포화효과 때문인 것으로 추측된다. 포화영역에서 측정된 스펙트럼으로부터 얻은 온도는 일반적으로 더 높다.

#### 4-2. DFWM 연구의 연구현황 및 연구주제

최근 들어 DFWM 기술을 연소진단에 응용하기 위한 연구가 매우 활발하게 진행되고 있는데, 이 기술의 장점은 높은 감지도, 소광에 의한 영향 적음, 이차원 상데이타 측정능력으로 요약할 수 있다. 특히 사용하는 레이저 광의 세기가 측정대상 분자/혹은 원자의 전자천이선의 포화세기 이상의 영역에서 신호대 잡음비가 좋을 뿐 아니라, 소광에 의한 영향도 매우 적은 것이 알려져 있다. 또한 포화세기가 매우 작은 값이므로 레이저로 실험을 하는 경우 쉽게 포화세기 이상의 영역에 이르게 된다. 따라서, 측정된 분광선에서 온도나

농도의 값을 정확하게 구하기 위하여 이러한 포화영역에서의 DFWM 신호의 분광선 모양에 관한 연구가 필요하다. DFWM 신호의 발생방법으로는 앞서 언급한 forward DFWM의 방법이 외에도 위상공액과 구조도 널리 사용되는데 후자의 경우 요동(turbulent)이 많은 환경에서 특히 효과적이다. 이 두 가지 위상정합 조건에 대하여 분광선의 모양이 서로 다른 모습을 보이는데 이에 대한 연구도 진행되고 있다.

그리고, 편리한 응용을 위하여 단일 펄스로 온도나 농도를 구하기 위한 광대역 DFWM 연구도 진행되고 있으며, 이를 위한 광원으로 무모드 색소레이저 광에 대한 연구가 광대역 DFWM 이론에 대한 연구가 필요한 상황이다.

## V. 결 론

이상의 논의에서 여러 가지 레이저를 응용한 연소진단기술의 기본적인 원리와 관련기술의 특징을 살펴보았으며, 현재 본 연구실에서 연구되고 있는 연구결과를 개략적으로 소개하였다. 아울러 각 기술마다 현재의 연구상황과 연구가 필요한 분야를 정리하여 향후 연구의 방향에 대하여 논의하였다.

## 참고문헌

1. R. E. Regnier and J. P. E. Taran, Appl. Phys. Lett. 23, 240(1973).
2. 한재원, 레이저 응용 연소진단기술, 연소진단 working group, 1994.
3. K. Kohse-Hoinghaus, Prog. Energy Combust. Sci. 20, 203 (1994).
4. T. Dreier and D.J. Rakestraw, Opt. Lett., 15, 72 (1990).
5. R.L. Farrow and D.J. Rakestraw, Science 257, 1894 (1992).

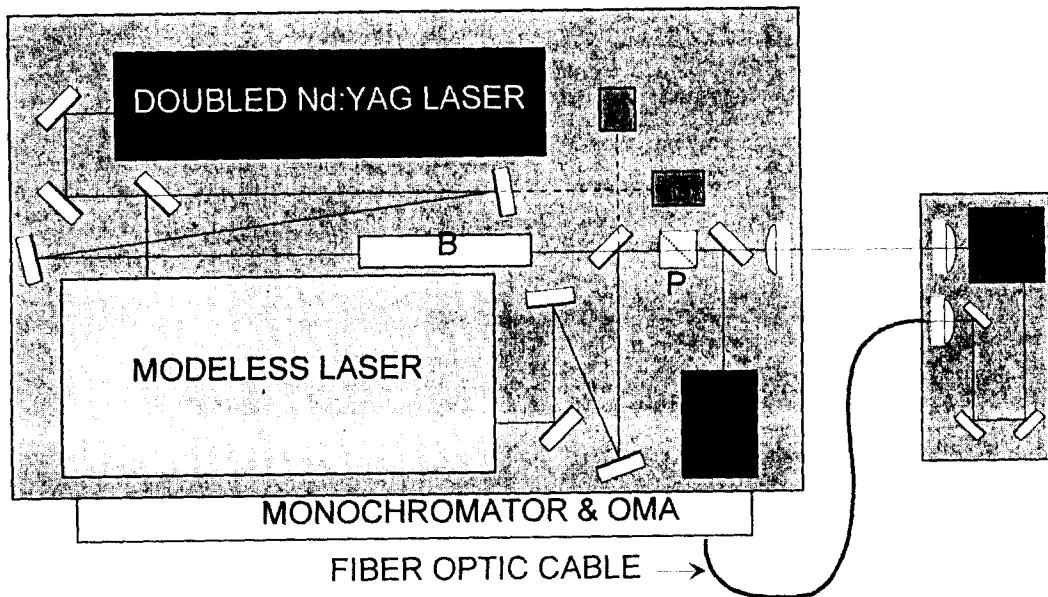


그림 1. 연소진단을 위한 광대역 CARS 분광기.

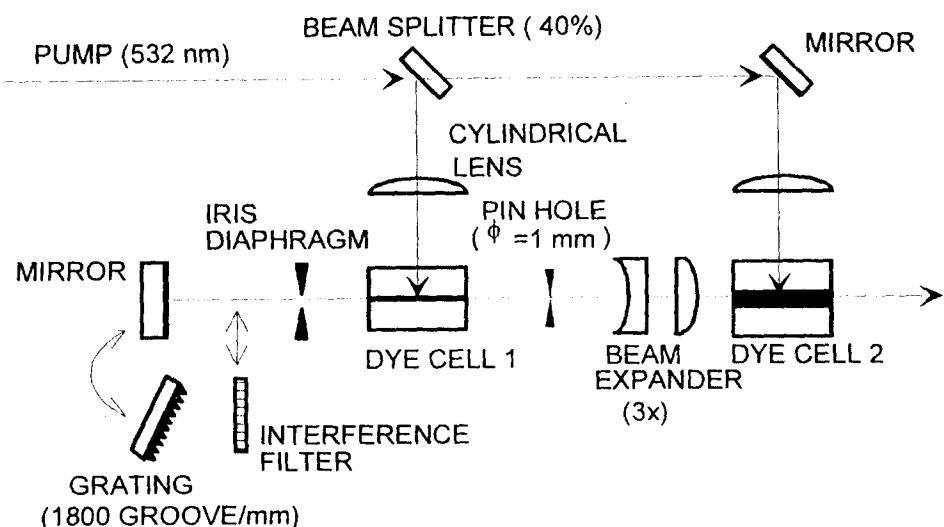


그림 2. 무모드 색소레이저.

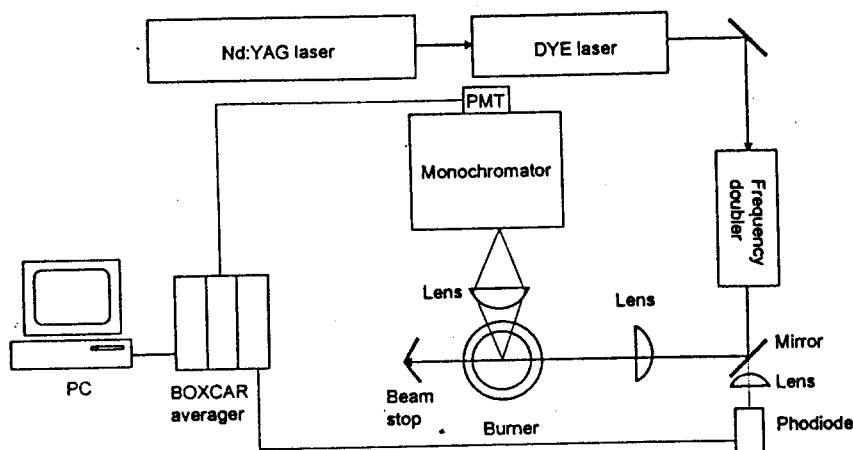


그림 3. 레이저 형광유도 측정 장치.

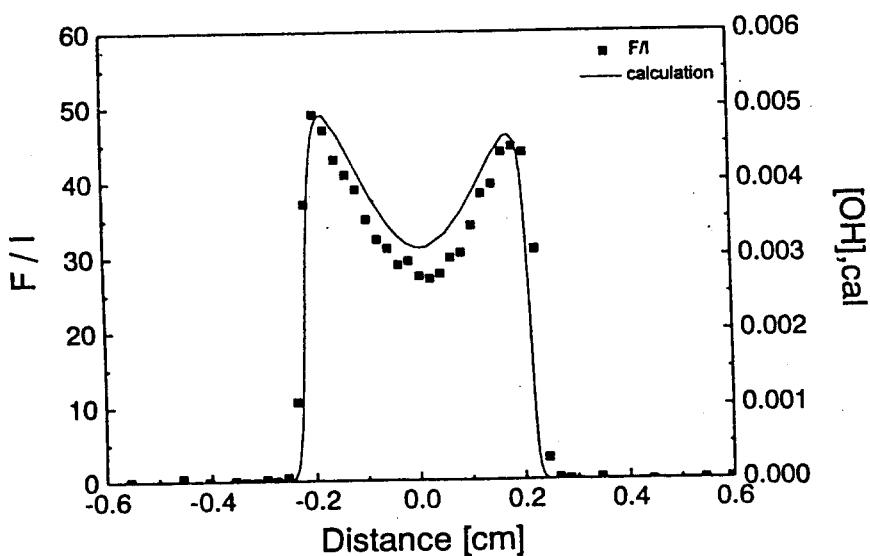
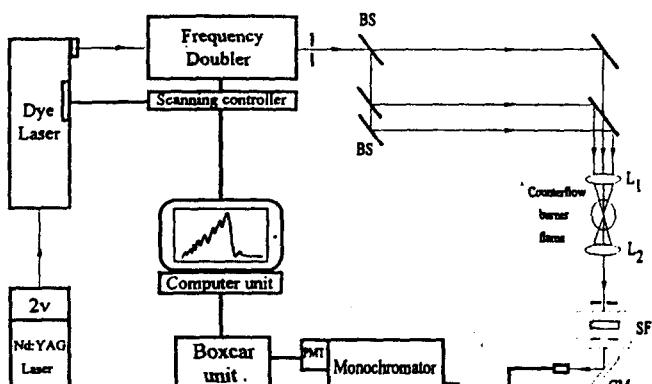
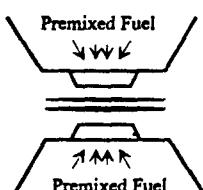


그림 4. 레이저 형광유도법으로 측정된 화염내부의 OH 농도 분포.



(a)



(b)

그림 5. 전방축퇴사광파 실험장치.

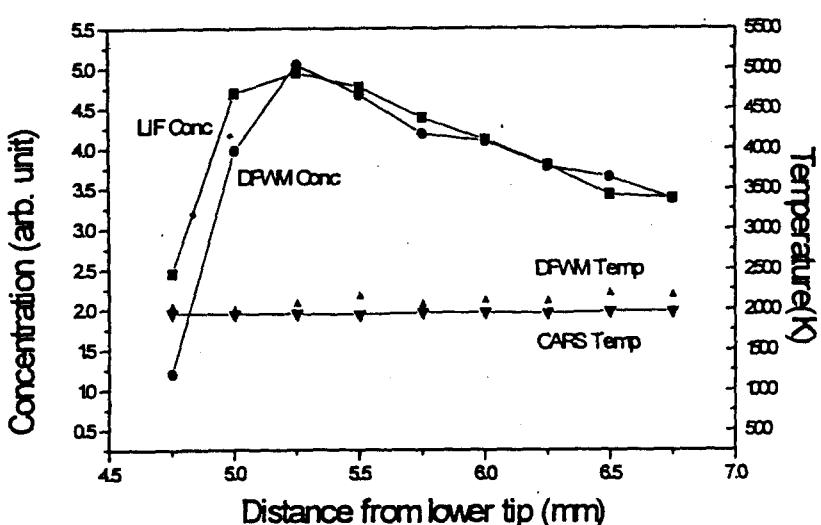


그림 6. DFWM을 이용하여 측정한 화염내부의 온도 및 OH 농도분포.