

## 2차원 시분해 레이저 유도 백열법을 이용한 에틸렌 확산 화염에서의 매연 입자 크기 측정

손무강<sup>†</sup>·문건필<sup>\*</sup>·김규보<sup>\*</sup>·이종호<sup>\*</sup>·정동수<sup>\*\*</sup>·전충환<sup>\*\*\*</sup>·장영준<sup>\*\*\*</sup>

### Soot Primary Particle Size Measurement in a Ethylene Diffusion Flame Using Time-Resolved Laser-Induced Incandescence

Moo Kang Shon, Gun Feel Moon, Gyu Bo Kim, Jong Ho Lee,  
Dong Soo Jeong, Chung Hwan Jeon and Young June Chang

**Key Words:** Soot Primary Particle Size(매연 입자 크기), Time-Resolved Laser-Induced Incandescence(시분해 레이저 유도 백열법), Cooling Behavior(냉각 거동)

#### Abstract

Laser-induced incandescence (LII) is introduced as a valuable tool for the characterization of nanoparticles in flame environments. This technique is based on the heating of the particles by a short laser pulse and the subsequent detection of the thermal radiation. It has been applied successfully for the investigation of soot in different fields of application. The evaluation of the temporal decay of the laser-induced incandescence (LII) signal from soot particles is introduced as a technique to obtain two-dimensional distributions of particle sizes and is applied to a laminar diffusion flame. This novel approach to soot sizing exhibits several theoretical and technical advantages compared with the established combination of elastic scattering and LII, especially as it yields absolute sizes of primary particles without requiring calibration. With this technique a spatially resolved 2-D measurement of soot primary particle sizes is feasible in a combination process from the ratio of emission signals obtained at two delay times after a laser pulse, as the cooling behavior is characteristic of particle size.

#### 기호설명

$S(t)$  : 레이저 유도 백열법 신호 [a.u.]  
 $r(t)$  : 매연 입자의 반지름 [nm]  
 $T(t)$  : soot 입자의 온도 [K]

#### 1. 서론

최근, 자동차 보유대수의 급격한 증가로 인해 대기오염은 날로 악화되고 있어 그 어느 때 보다 심각한 사회문제로 대두되고 있는 실정이다. 또한 이러한 매연 입자는 그 배출 양에 많은 문제가 있기도 하지만 최근 연구보고에 따르면 매연 입자의 크기 분포가 인체에 미치는 심각성이 상당함을 알 수 있다.<sup>(1)</sup>

레이저 백열기법은 레이저 조사로 발광된 작은 입자들의 열복사를 해석하는데 기초를 두고 있다. 최근 몇 년간 시간, 공간 분해능을 가진 매연 입자 가시화 기법으로 높은 주목을 받고 있다. 최대 매연 온도지점에서 LII신호는 대략 체적분

† 논문발표자, 회원, 부산대학교 대학원 기계공학과  
E-mail : sonson04@empas.com

TEL : (051)510-3035 FAX : (051)582-9818

\* 회원, 부산대학교 대학원 기계공학과

\*\* 회원, 한국기계연구원

\*\*\* 회원, 부산대학교 기계공학부 기계기술연구소

율에 비례하게 되고 이는 향후 엔진과 같은 복잡한 시스템에 있어서도 매연 농도나 입자크기를 측정하는데 이용된다.

레이저 유도 백열법에 관한 연구는 1977년 Eckbreth<sup>(2)</sup>에 의해 매연이 있는 화염에서 라만 산란 신호를 압도하는 매연입자의 배경광도의 관찰로부터 처음 밝혀졌으며 이후 Melton<sup>(3)</sup>이 레이저 세기(fluence)와 매연입자크기의 함수로서 LII신호를 이론, 수치적으로 예측하였고, 매연 질량농도에 대한 LII의 비례성을 보였다. Melton모델의 확대로, Hefeldt<sup>(4)</sup>는 어떻게 파장에 의존하는 물성치가 각각 다른 직경의 매연입자의 흡수 및 방출특성을 변경하는가를 해석함으로써 Melton 이론을 확장하였다.

Quay<sup>(5)</sup> 등은 LII신호가 어떤 세기 이하에서는 레이저세기에 선형적이며, 어떤 세기 이상에서는 포화되고 거의 일정한 "plateau" 영역을 나타냄을 보였으며, Ni<sup>(6)</sup> 등은 LII신호의 2차원 이미징으로 LII기법을 확대하였다.

Santoro<sup>(7)</sup> 등은 광산란/감쇠법을 이용하여 동축 확산화염에서 매연입자의 입자크기 분포를 측정하여, 화염의 구조가 매연 성장에 지배적인 영역과 산화가 지배적인 영역의 2개의 영역으로 나누어짐을 밝혔으며 이 연구가 LII 신호의 정량화에 많이 이용되어지고 있으며, Vander wal<sup>(8,9)</sup> 등은 예혼합 평면 화염의 매연 체적분율을 LII로 측정하여 적절한 검출 게이트 시간을 선택하면 레이저 유도 간섭을 제거한 시간-공간적으로 분해능을 가지는 측정이 가능하다고 보고하였다.

Will<sup>(10-12)</sup> 등은 2차원 이미지 기법으로 시간분해능에 따른 LII신호를 이용하여 화염내 매연의 크기를 LII신호의 비로 직접적으로 구하는 TIRE-LII(Time resolved LII) 기법을 제시하였다. 이는 매연 입자의 냉각특성이 입자크기 정보를 나타내고 있다는 사실에 근거하여, 레이저 조사 후 서로 다른 두 시점에서 LII 신호의 비(ratio)를 조사함으로써 정량적인 2차원 입자크기측정을 가능하게 하는 기법이다.

따라서 본 연구에서는 에틸렌 공기 확산화염 내 발생하는 매연입자의 크기를 시간분해능 레이저 백열기법(TIRE-LII)을 통하여 정성적으로 구한 후, TEM 이미지와 비교하여 정량적인 입자크기 정보를 얻고자 하였다. 또한, 이를 바탕으로 2차원 이미징 기법을 적용하여 향후 엔진과 유사한

고압의 환경조건에서 실시간으로 매연 입자정보를 취득하는데 기초 데이터를 제공하고자 한다.

## 2. 이론적 배경

일반적으로 Mie 이론방정식은 200~1500nm 범위내의 매연입자에 대해 입자가 구라고 가정하고 그에 대한 광학적 물성치를 이용하여 수치적으로 해석하는 것이다. 이러한 수치적인 해는 에너지와 질량 균형 방정식에서 쓰이며 이는 다음의 식들과 같이 온도와 입자반경의 함수로 나타낼 수 있다. 아래 식들에 대한 자세한 내용은 문헌<sup>(13)</sup>을 참조하기로 한다.

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{p^*}{\rho_s} \sqrt{\frac{W_V}{2R_m T}} \exp\left[-\frac{\Delta H_V(T)(T-T^*)}{R_m T T^*}\right] \quad (1)$$

$$\frac{dT}{dt} = -\frac{3\bar{q}_{rad}(T, r)}{r\rho_s c_s} - \frac{3(T-T_\infty)k_\infty}{[1+G\lambda_{npp}/2r(t)]r(t)^2\rho_s c_s} + \frac{3\alpha_{abs}(r, \lambda_0)I_L(t, x)}{4r(t)\rho_s c_s} + \frac{3\Delta H_V(T)\bar{r}(t)}{W_V r(t)c_s} \quad (2)$$

식(1), (2)로부터 입자에 대한 LII신호는 다음과 같이 계산될 수 있다.<sup>(14)</sup>

$$\frac{d}{dt} [\ln S(t)] \approx \frac{C_1}{T(t)} \frac{dT(t)}{dt} \quad (3)$$

식(3)은 LII신호가 단지 매연입자의 온도 함수로 표현되어 짐을 나타내며, 낮은 레이저 세기를 조사한 대기압 화염에서는 전도열전달이 지배적으로 일어나기 때문에 식(3)은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} [\ln S(t)] &= \frac{3C_1 h [T(t) - T_0(t)]}{\rho_s c_s a T(t)} \\ &\approx -\frac{C}{a} \end{aligned} \quad (4)$$

단, C는 매연입자의 밀도와 비열계수, 플랑크 상수와 관련된 상수를 의미한다. 대기압 화염에서 입자크기와 LII 신호사이의 관계를 근사화 시킨 식(4)로부터, LII 신호의 음의 기울기는 입자반경에 반비례함을 알 수 있다.

## 3. 실험장치 및 방법

3.1 버너 및 연소조건

Fig. 1은 본 실험에 사용된 동축류 버너의 개략도를 나타낸 것으로, 에틸렌( $C_2H_4$ ) 연료는 내경 8mm 관을 통해 공급되며 주변으로 화염 안정화를 위한 이차 공기가 공급된다. 균일한 유동이 생성되도록 버너내부에 3mm의 유리구슬로 채웠으며 버너출구에 세라믹 하니컴(Honeycomb)을 설치하여 화염을 최대한 안정화시켰다. 본 실험에 사용된 연료, 공기의 유량은 각각 0.117, 50(lpm)으로써 이때의 화염높이는 약 40mm였다.

3.2 LII 이미지 측정장치

본 연구에 사용된 레이저 유도 백열법 (LII) 실험장치는 Fig. 2 에 나타난 것과 같이 1차원과 2차원 측정을 위한 장치로 구성되어 있다. 장치도는 크게 버너와 화염에 LII 신호발생을 위한 2차 고조파의 Nd:YAG 레이저, 레이저광을 측정부에 조사하는 광학장치부(프리즘, 핀홀, 실린드릭컬

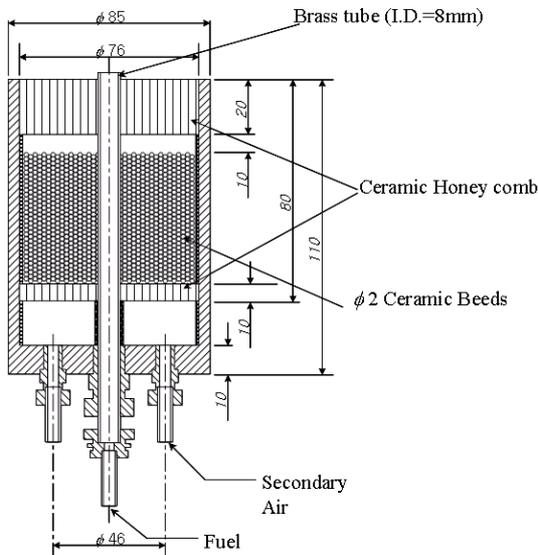


Fig. 1 Schematic diagram of burner

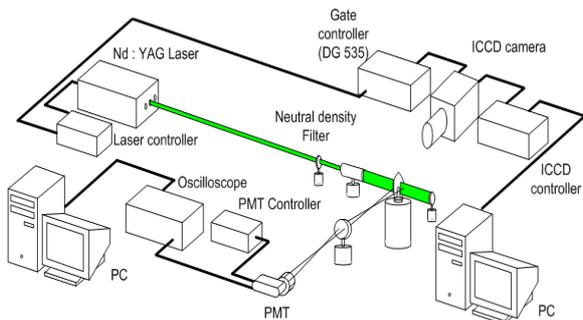


Fig. 2 Schematic diagram of LII system(1-D and 2-D data acquisition system

렌즈, 초점 렌즈) 그리고 LII신호를 검출하는 광증배관과 신호 및 영상 취득부(오실로 스크프, ICCD 카메라)로 구분 할 수 있다. 본 실험에서는 생성된 LII 신호를 1차원 정보는 광증배관으로 취득하였고, 2차원 이미지는 대역필터(중심파장 400nm, FWHM=10nm)를 장착한 ICCD 카메라로 취득하였다.

3.3 실험방법

Nd:YAG 레이저로부터 조사되는 에너지가 광학장치부를 통과하여 측정하고자 하는 화염의 높이를 지나 레이저 빔 덤프에 맞도록 하였다. 이때 생성되는 LII 신호는 레이저 Q-switch 와 레이저 펄스 지연을 고려하여 게이트 조절기(DG535)를 이용하여 시분해 시켰으며 ICCD 카메라를 통해 2-D 이미지를 취득하였다

TIRE-LII 기법은 LII 신호 이외의 입사광의 산란에 의한 산란광과 PAH 등에 의한 형광 이외에도  $C_2$  분자에 의한 산란과 같은 노이즈가 검출된다. 따라서 순수한 LII 신호가 검출되는 400nm 파장대의 필터를 ICCD 카메라 앞에 부착하였으며 ICCD 카메라의 게이트 폭은 25, 50ns로 100회 적산하여 이미지를 취득하였다.

4. 실험결과 및 고찰

4.1. 1차원 LII 신호 측정

Fig. 3에 레이저 강도에 따른 LII 신호 결과를 나타냈다. 그림에서 보듯,  $0.2J/cm^2$  이하에서 최고

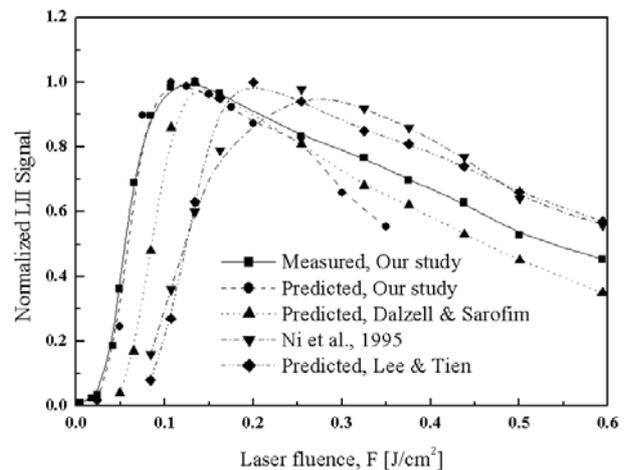


Fig. 3 Effect of the optical properties of soot on the prediction of the excitation curve

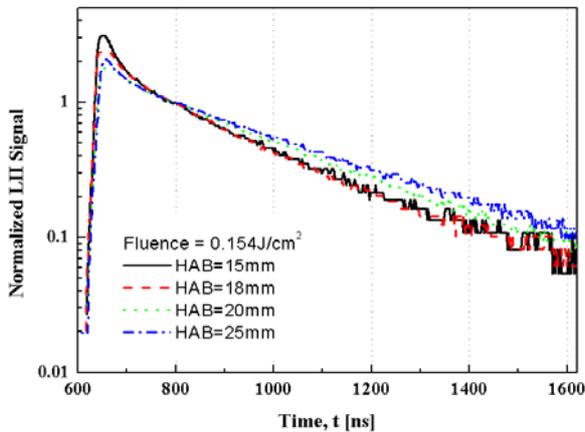


Fig. 4 Temporal profile of normalized LII signal obtained at heights of 15, 18, 20 and 25mm above burner and at radial locations corresponding to peak soot volume fraction for these heights

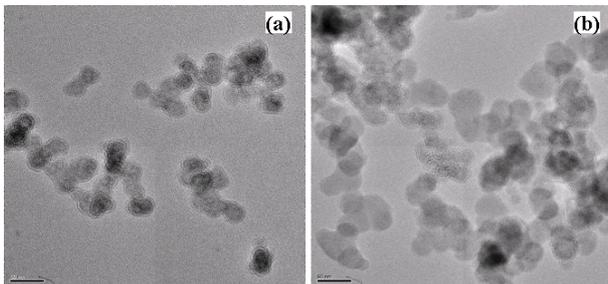


Fig. 5 TEM micrographs of laser-heated soot captured via thermophoretic sampling at (a) HAB=15mm and (b) HAB=20mm

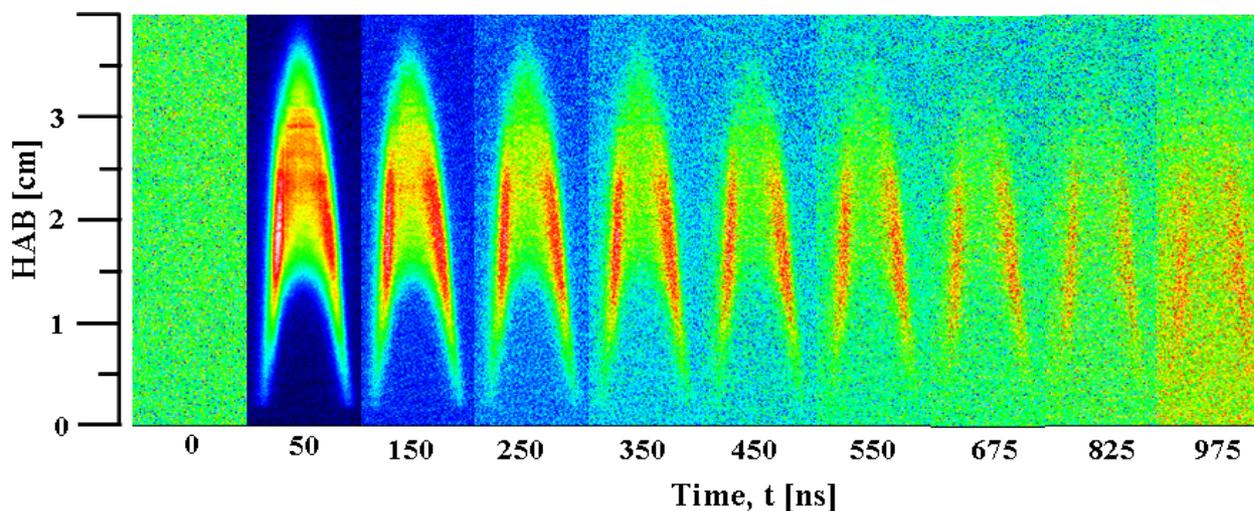


Fig. 6 Temporal sequence of 2-D LII image

값을 가진 후 감소하는 경향을 확인할 수 있었다. 이로부터 2차원 측정을 위한 레이저 강도를  $0.154\text{J}/\text{cm}^2$ 으로 선정하였다. 실험값과 본 저자들에 의해 예측된 값과도 아주 잘 일치하는 경향을 발견할 수 있으며 전체적으로 Dalzell and Sarofim의 예측치와 유사한 경향을 나타내었다. 반면에 Ni등의 실험결과 또는 Lee and Tien등의 예측치와는 약간의 차이를 보이는데 이는 매연의 광학적 성질을 나타내는 상수 중에서 refractive index의 차이에서 기인한 결과로 사료된다.<sup>(6,15)</sup>

Fig. 4는 LII 점 측정에서 선정한  $0.154\text{J}/\text{cm}^2$ 의 레이저 강도로 조사 후 서로 다른 화염높이에서 취득한 LII 신호를 체적분율이 최대가 되는 지점에서 나타내고 있다. HAB=25mm에서 취득한 LII 신호의 기울기가 HAB=15mm에서 취득한 LII 신호에 비해 완만히 감소하는 경향을 발견할 수 있는데, 이는 25mm에서의 입자가 상대적으로 더 크다는 것을 의미한다.

#### 4.2 TEM 이미지

Fig. 5는 화염내의 매연입자를 열영동법으로 취득한 것으로, Fig. 4의 HAB=15, 20mm에 해당되는 위치에서의 TEM 이미지 결과를 나타내고 있다. Fig. 5 (a), (b)에서 측정 가능한 입자개수는 각각 300, 560개 정도로써, 입자크기 분포를 가우시안 함수로 가정하였을 경우 평균직경과 표준편차는 각각 31nm, 41nm 와 4.78, 4.74였다. 따라서 Fig. 4, 5의 결과를 바탕으로 식(4)의 상수 C값을 결정하였다.

### 4.3 2D 화염 이미지

Fig 6은  $0.154\text{J}/\text{cm}^2$ 의 레이저 강도로 조사한 후 취득한 2D TIRE-LII 화염 이미지이다. 좌측 그림 (a)로부터 각각 50ns씩 시분해하여 얻은 화염 이미지이며 오른쪽으로 갈수록 시간에 따른 LII 강도는 약해짐을 알 수 있다. 또한 이때 생성된 LII 신호의 수명은 약 1000ns임을 확인할 수 있었다. 각각은 배경 값을 뺀 이미지로써 두 시점에서의 신호비로부터 각 위치에서의 매연입자 크기를 알 수 있다.

### 4.4 TIRE-LII에 의한 입자크기 분포

Fig. 7은 LII 점 측정을 수행한 화염높이 (HAB=15, 18, 20, 25mm)에서 2차원 LII 이미지를 통해 얻은 반경방향에 따른 입자크기 분포를 나타낸다. 매연입자의 열 손실 메커니즘은 레이저 조사 후 ~50ns까지는 증발효과가 지배적이므로 전달 열전달 메커니즘이 우세한 100ns 이후의 두 시점을 택하여 입자분포를 구하였다.

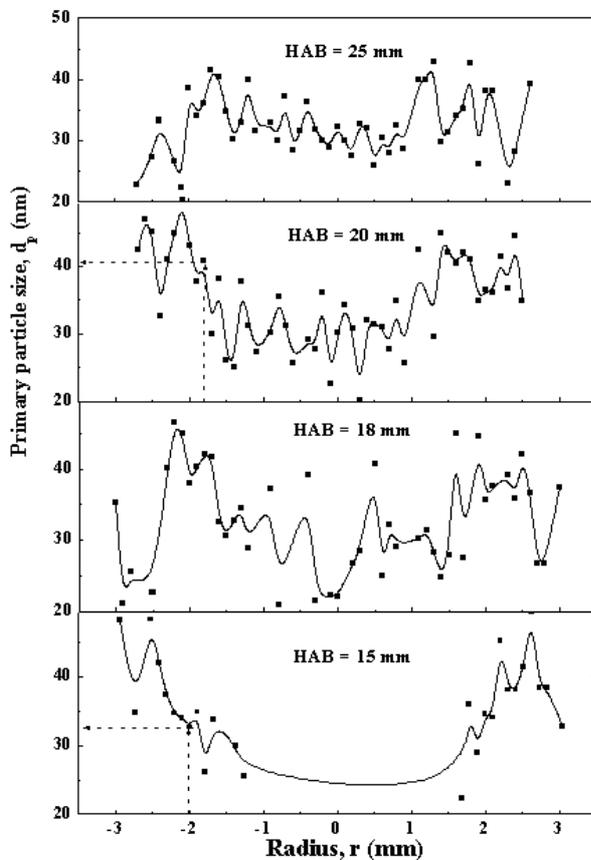


Fig. 7 Radial profiles of primary particle size at heights of 15, 18, 20 and 25mm above burner

전체적인 경향을 살펴보면 화염중심에서 20nm 정도의 작은 입자가 분포하며 체적분율이 최대가 되는 반경에서 큰 입자가 분포함을 알 수 있다. 또한 LII 점 측정과 TEM 이미지를 획득한 HAB=15, 20mm의 최대 체적분율을 가지는 반경 방향 위치에서의 입자크기는 각각 32, 40nm 정도로 잘 일치하는 경향을 나타내는데 이는 2차원 LII 이미지 측정을 통한 입자분포 취득이 충분히 가능하다는 것을 의미한다.

## 5. 결론

본 연구에서는 에틸렌 확산 화염에서 TIRE-LII 기법을 이용하여 매연의 입자크기를 측정해 보았다. 우선 1D LII신호와 그 지점에서의 TEM 이미지를 비교하여 정량적인 매연입자크기를 확인할 수 있었으며 이를 바탕으로 화염에서의 TIRE-LII 신호를 ICCD 카메라를 통해 2-D 이미지로 획득하고 시분해 된 신호의 기울기 특성을 이론적인 식(4)에 적용시켜 화염 각 위치에 해당하는 높이 방향, 반경방향 변화에 따른 매연입자의 크기를 정성적으로 구해 보았으며 이를 TEM 이미지와 비교하여 정량화시켜, 이로부터 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 각 지점에서의 결과는 TIRE-LII 신호 기울기 특성을 직접적으로 식(4)의 이론식을 통하여 계산한 결과, 전도열전달이 지배적인 위치에서의 신호 기울기가 급한 곳이 상대적으로 매연입자의 크기가 작게 나옴을 알 수 있었다.

(2) 화염높이에 대한 전체 반경에 대한 매연입자 크기분포에서는 화염하단으로 갈수록 화염 중심에서 반경방향으로 멀어 질수록 입자크기는 더 커짐을 알 수 있었다.

(3) 따라서 이러한 TIRE-LII 신호특성만으로 특별한 보정 없이 바로 실시간으로 화염 내 매연입자의 크기를 정성적으로 측정이 가능함을 확인할 수 있으며 실제 TEM 이미지나 수치적 모델링과의 비교분석을 통해 정량적인 측정도 가능하며 이는 향후 엔진과 같은 복잡한 시스템에서의 매연입자 크기를 실시간으로 측정할 수 있을 것으로 기대한다.

후 기

본 연구는 2004년도 과학기술부 핵심연구 개발 사업의 미래형 자동차 배기가스 제로 화 기술개발의 지원으로 이루어진 것으로 지원을 해주신 관계자 여러분께 감사드립니다.

### 참고문헌

- (1) Lehre T., Jungfleisch B., Suntz R., and Bockhorn H., 2003, "Size Distributions of Nanoscaled Particles and Gas Temperatures from Time-Resolved Laser-Induced Incandescence Measurements," *Applied Optics*, Vol. 42, pp. 2021~2030.
- (2) Eckbreth A. C., 1977, "Effects of Laser Modulated Particle Incandescence on Raman Scattering Diagnostics," *J. Appl. Phys.*, Vol. 48, pp. 4473~4479.
- (3) Melton L. A., 1984, "Soot Diagnostics Based on Laser Heating," *Applied Optics*, Vol. 23, pp. 2201~2208.
- (4) Hefedt D. L., 1993, "Real-Time Soot Concentration Measurement Technique for Engine Exhaust Streams," *SAE technical paper* No. 930075, pp. 33~45.
- (5) Quey B., Lee T. W., Ni T., and Santoro R. J., 1994, "Spatially Resolved Measurements of Soot Volume Fraction Using LII," *Combust. Flame*, Vol. 97, pp. 384~392.
- (6) Ni T., Pinson J. A., Gupta S., and Santoro R. J., 1995, "2-Dimensional Imaging of Soot Volume Fraction by the Use of LII," *Applied Optics*, Vol. 34, pp. 7073~7091.
- (7) Santoro R. J., Semerjian H. G., and Dobbins R. A., 1983, "Soot Particle Measurements in Diffusion Flames," *Combust. Flame*, Vol. 51, pp. 203~218.
- (8) Vander Wal. R. L., 1996, "Laser-Induced Incandescence : Detection Issues," *Applied Optics*, Vol. 35, pp. 6548~6559.
- (9) Vander Wal. R. L., Ticich, T. M., and West, Jr., 1999, "Laser-Induced Incandescence Applied to Metal Nanostructures," *Applied Optics*, Vol. 38, pp. 5867~5879.
- (10) Will S., Schraml S., and Leipertz A., 1995, "Two-Dimensional Soot-Particle Sizing by Time-Resolved Laser-Induced Incandescence," *Optics Letter*, Vol. 20, pp. 2342~2344.
- (11) Will S., Schraml S., and Leipertz A., 1996, "Comprehensive Two-Dimensional Soot Diagnostics Based on Laser-Induced Incandescence (LII)," *Proc. Combust. Instit.*, Vol. 26, pp. 2277~2284.
- (12) Will S., Schraml S., Bader K., and Leipertz A., 1998, "Performance Characteristics of Soot Primary Particle Size Measurements by Time-Resolved Laser-Induced Incandescence," *Applied Optics*, Vol. 37, pp. 5647~5658.
- (13) Schittkowski T., Mewes B., Brüggemann D., 2002, "Laser-Induced incandescence and Raman Measurements in Sooting Methane and Ethylene flames," *Phys. Chem. Phys.*, Vol. 4 pp. 2063~2071.
- (14) G. S. Eom, C. W. Park, Y. H. Shin, K. H. Chung, S. Park, W. Choe and J. W. Hahn, 2003, "Size determination of nanoparticles in low-pressure plasma with laser-induced incandescence technique," *Appl. Phys. letters*, Vol. 83, NO. 6, pp. 1261~1263.
- (15) Snelling, D. R., Liu, F., Smallwood, G. J., and Gülder, Ö, L., 2000, "Evaluation of the Nanoscale Heat and Mass Transfer Model of LII : Prediction of the Excitation Intensity," *Proceedings of the NHTC 2000, 34th National Heat Transfer Conference*, Pittsburgh, PA, August 20-22.