

TIRE-LII 기법을 이용한 매연 입자 크기에 관한 수치적 연구

김정용[†]·이종호^{*}·정동수^{**}·전충환^{***}·장영준^{***}

Numerical Investigation on Soot Primary Particle Size Using Time Resolved Laser Induced Incandescence (TIRE-LII)

Jeong Yong Kim, Jong Ho Lee, Dong Soo Jeong,
Chung Hwan Jeon, Young June Chang

Key Words: Soot Primary Particle Size(매연입자크기), Time-resolved Laser Induced Incandescence(시분해 레이저 유도 백열법)

Abstract

Temporal behavior of the laser induced incandescence (LII) signal is often used for soot particle sizing, which is possible because the cooling behavior of a laser heated particle is dependent on the particle size. In present study, LII signals of soot particles are modeled using two non-linear coupled differential equations deduced from the energy- and mass-balance of the process. The objective of this study is to see the effects of particle size, laser fluence on soot temperature characteristics and cooling behavior. Together with this, we focus on validating our simulation code by comparing with other previous results. Results of normalized LII signals obtained from various laser fluence conditions showed a good agreement with that of Dalzell and Sarofim's. It could be found that small particles cool faster at a constant laser fluence. And it also could be observed that vaporization is dominant process of heat loss during first 100ns after laser pulse, then heat conduction played most important role while thermal radiation had little influence all the time.

기호설명

$S(t, \lambda)$: 레이저 유도 백열 신호 [a.u.]
 $r(t)$: 매연 입자 반경 [nm]
 $T(t)$: 매연 입자 온도 [K]
 F_L : 레이저 세기 [Jcm^{-2}]

1. 서 론

연소연구에서 매연 생성은 오래전부터 연구의 논제가 되어왔다. 오늘날, 오염물질로서의 매연의 중요성은 특히 디젤 엔진의 연구 분야에 있어서 가장 중요한 도전 중의 하나로 인식되어왔다. 매연은 또한 연소기의 성능, 신뢰도, 내구성 등에 중대한 영향을 끼치고, 연소를 할 때 열전달에 아주 중요한 요소이다. 따라서 매연의 측정은 생성과 파괴 과정을 연관하여 이해하는 것이 필요하다. 그 중요인자로서는 매연 체적분율, 입자크기 등이 있다.

레이저 백열법에서 나오는 시간에 따른 신호 감쇠는 입자의 냉각에 영향을 받는 것으로, 즉 입자크기에 의존한다고 알려져 있다.^(1,2) 이 기법

[†] 논문발표자, 회원, 부산대학교 대학원 기계공학과
E-mail : parabest@hotmail.com

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

* 회원, 부산대학교 대학원 기계공학과

** 회원, 한국기계연구원

*** 회원, 부산대학교 기계공학부 기계기술연구소

을 Time-Resolved Laser-induced incandescence (TIRE-LII) 라 부른다. 그러므로 매연 입자의 크기를 계산하기 위해, TIRE-LII 신호의 이론적 모델을 사용한다.

레이저 유도 백열법의 수치적 모델의 연구는 기본적으로 1984년 Melton⁽¹⁾이 제시한 식에 기초를 두고 있다. Melton 모델 이후에 개선점들을 가지고 수정된 모델들이 나왔다.

TIRE-LII 의 선행 연구들은 입자크기를 계산하는데 있어, 불확실한 계수들을 밝히는데 그 중점이 있었다. Will⁽³⁾ 등은 주위 공기 온도의 불확실성으로 입자크기를 계산하는데 있어 오류가 매우 크다고 밝혔다.

본 연구에서는 매연 입자 크기와 온도를 계산할 수 있는 모델을 제시하고, 이 모델로부터 입자 크기와 레이저 강도가 매연 입자 온도 및 냉각각동에 미치는 영향을 살펴봄과 동시에 지배적인 열전달 메커니즘을 알아보려고 한다.

2. 수학적 모델

2.1 에너지 평형

LII는 레이저 조사에 의해 입자가 가열되는 것에 기초를 둔다. LII의 모든 모델은 입자의 에너지 평형에 기초를 둔다. 입자의 가열은 흡수되는 방향으로 표현되며, 입자의 냉각은 주로 증발과 주위로의 전도와 에너지의 흑체복사로써 이루어진다. Fig. 1은 에너지 평형을 대략적으로 나타낸 것이며, 에너지 평형식은 다음과 같다.

$$\frac{dU}{dt} = \dot{Q}_{abs} - \dot{Q}_{vap} - \dot{Q}_{con} - \dot{Q}_{rad} \quad (1)$$

내부에너지 변화는 다음과 같이 표현된다.

$$\frac{dU}{dt} = m_p c_s \frac{dT}{dt} \quad (\text{where, } m_p = \frac{4}{3} \pi r(t)^3 \rho_s) \quad (2)$$

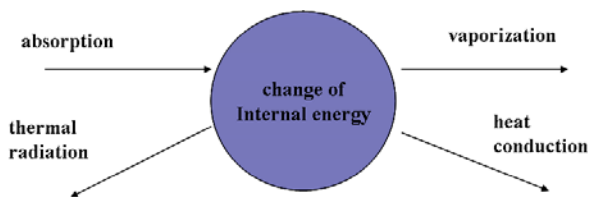


Fig. 1 Schematic representation of the power balance of a laser heated soot particle

매연 입자는 레이저 에너지 조사에 의해 가열된다. \dot{Q}_{abs} 항은 가열면적과 여기과장에 따른 흡수계수 $\alpha_{abs}(r, \lambda_0)$ 으로 표현되어진다.⁽¹⁾

$$\dot{Q}_{abs} = \alpha_{abs}(r, \lambda_0) I_L(t, x) \pi r(t)^2 \quad (3)$$

(where, $\alpha_{abs} = \begin{cases} \beta(m) & a > \delta \\ a/\delta & a < \delta \end{cases}$)

가시화영역에서는 $\delta \approx 0.1 \mu\text{m}$, 자외선(200-300nm) 영역에서는 δ 를 0.01-0.02 μm 로 가정한다.

증발항 \dot{Q}_{vap} 는 질량의 변화에 따른다. 증발엔탈피는 $\Delta H_V(T) = 6.579 \times 10^7 T^{-0.5364} \text{ Jmol}^{-1}$ 로 근사하며⁽⁴⁾, W_v 는 물질량이다.

$$\dot{Q}_{vap} = - \frac{\Delta H_V(T)}{W_v} \frac{dm_p}{dt} \quad (4)$$

전도항 \dot{Q}_{con} 은 입자의 면적과 주위 온도와의 차이, 열전달계수 h 에 의해 표현된다.

$$\dot{Q}_{con} = 4\pi r(t)^2 h \frac{(T - T_\infty)}{r(t)} \quad (5)$$

Snelling⁽⁵⁾ 등은 G 와 K_n 에 의존하는 열전달계수를 계산하였다. k_∞ 와 λ_{mfp} 는 Sutherland 근사⁽⁶⁾에 의해 표현되어진다.

$$h = \frac{k_\infty}{1 + GK_n} \quad (\text{where, } K_n = \frac{\lambda_{mfp}}{2r(t)}) \quad (6)$$

검출된 Planck 복사는 다음과 같이 표현된다.

$$\dot{Q}_{rad} = 4\pi r(t)^2 \dot{q}_{rad}(T, r) \quad (7)$$

$\dot{q}_{rad}(T, r)$ 는 방사과장의 적분에 의해 계산되어진다. 입자의 방사계수는 흡수계수와 같다고 가정한다.

$$\dot{q}_{rad}(T, r) = \int_0^\infty \alpha_{abs}(r, \lambda) \frac{c_1 n_\infty^2}{\lambda^5 (e^{c_2/\lambda T} - 1)} d\lambda \quad (8)$$

지금까지 표현된 식을 정리하면, 다음과 같다.

$$\frac{dT}{dt} = - \frac{3\dot{q}_{rad}(T, r)}{r \rho_s c_s} - \frac{3(T - T_\infty)k_\infty}{[1 + G\lambda_{mfp}/2r(t)]r(t)^2 \rho_s c_s} + \frac{3\alpha_{abs}(r, \lambda_0) I_L(t, x)}{4r(t) \rho_s c_s} + \frac{3\Delta H_V(T)r(t)}{W_{vr}(t)c_s} \quad (9)$$

2.2 질량 평형

질량 평형식은 다음과 같다.

$$-\rho_s \frac{dr}{dt} = \rho_V U_V \quad (10)$$

ρ_V 는 증기화 된 매연 입자의 밀도이다. U_V 는 Langmuir 증발율이다.⁽⁷⁾ U_V 는 온도와 물질량의 함수이다. 이때, 매연과 증기의 온도는 같다. 이 상기체방정식에 의해서 ρ_V 와, Clausius-Clapeyron 방정식에 의해서 증기압력이 계산되어진다.

$$\rho_V = \frac{p_V W_V}{R_m T} \quad (11)$$

$$p_V(T) = p^* \exp\left[\frac{\Delta H_V(T)(T - T^*)}{R_m T T^*}\right] \quad (12)$$

지금까지 표현된 식을 정리하면, 다음과 같다.

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{p^*}{\rho_s} \sqrt{\frac{W_V}{2R_m T}} \exp\left[\frac{\Delta H_V(T)(T - T^*)}{R_m T T^*}\right] \quad (13)$$

2.3 LII 신호

에너지 및 질량 방정식을 통해서, 식(9)과 식(13)의 두 개의 비선형방정식을 유도했다. 상수들은 Schittkowski⁽⁸⁾의 연구를 참고하여, Table 1에 정리했다. 방정식을 수치해석하게 되면 시간에 따른 매연입자의 온도와 반지름을 구할 수 있다.

Table 1 Constants

Symbol	Description
R	Specific gas constant
R_m	Universal gas constant
p_∞	Pressure of surrounding gas
n_∞	Refractive index of surrounding gas
ρ_s	Density of soot
W_v	Molecular weight of vaporized soot
c_s	Specific heat of soot
k_0	Reference value for thermal conductivity
T_{k0}	Reference temperature for thermal conductivity
S_k	Sutherland constant for thermal conductivity
η_0	Reference value for dynamic viscosity
$T_{\eta 0}$	Reference temperature for dynamic viscosity
S_η	Sutherland constant for dynamic viscosity
T^*	Vaporization temperature of soot
p^*	Reference pressure for vaporization
c_1	First constant in Planck's formula
c_2	Second constant in Planck's formula
G	Heat transfer geometry factor for spheres

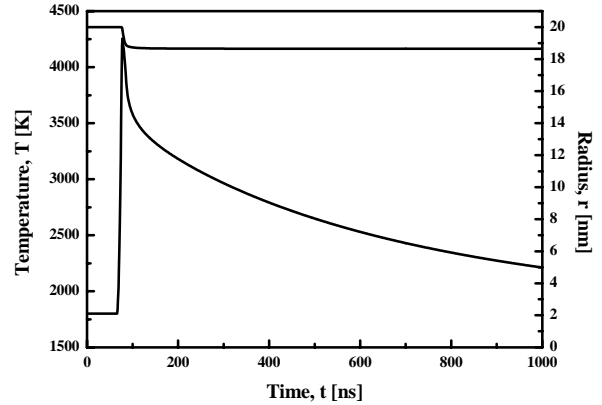


Fig. 2 Simulation of temporal evolution of soot particles

LII 신호의 계산은 직접적으로 입자의 온도와 반지름을 통하여 구할 수 있으며, 그 식은 Will⁽³⁾에 의해 표현되었다.

$$S_{LII} \propto r^2 \int R(\lambda) \alpha_{abs}(r, \lambda) \frac{c_1 n_\infty^2}{\lambda^5 (e^{c_2/\lambda T} - 1)} d\lambda \quad (19)$$

$R(\lambda)$ 는 광학 시스템의 전송과 검출기의 스펙트럼의 민감도에 대한 복합적인 함수로서, 본 논문에서는 단일 검출파장을 사용하였기에 생략하였다.⁽⁹⁾

Fig. 2는 $F_L=0.15\text{J/cm}^2$, $r_0=20\text{nm}$, $T_0=1800\text{K}$, 펄스 지속시간은 20ns로 두고 수치해석을 통해 얻은 매연의 온도와 반경에 대한 결과이다.

3. 결과 및 고찰

3.1 입자 반경의 영향

일정한 강도를 조사하였을 때, 입자의 반경크기(r_0)에 따른 온도특성과 냉각거동을 알아보기 위해 $F_L=0.15\text{J/cm}^2$, $T_0=1800\text{K}$, 펄스 지속시간은 20ns 조건에서 r_0 을 20~60nm 범위에서의 수치해석 결과를 Fig. 3에 나타내었다. Fig. 3(a)는 시간에 따른 매연온도변화를, Fig. 3(b)는 로그취한 LII 신호를 나타낸다. Fig. 3(a)에서 보듯 조사된 레이저 강도는 모든 반경조건에서 입자를 증발온도(3915K)보다 높게 가열시킴을 발견할 수 있다. 이로 인해 Fig. 3(b)에서 큰 입자에서의 신호의 감쇠 기울기의 절대값이 작아지게 되는데, 이는 큰 입자일수록 천천히 냉각됨을 의미한다.

3.2 레이저 세기의 영향

일반적으로 매연입자는 532nm 여기과장에서 레이저 세기 $0.2\text{J}/\text{cm}^2$ 이상에서 증발하기 시작한다고 알려져 있다.⁽¹⁰⁾ 이러한 관점에서, 본 모델을 사용하여 일정한 크기의 입자에 대해 조사되는 레이저 펄스 에너지를 변화시켰을 때 매연 입자의 온도 특성과 냉각거동을 조사하였다.

Fig. 4는 $r_0=20\text{nm}$, $T_0=1800\text{K}$, 펄스지속기간 20ns 조건하에서 레이저 세기(F_L)를 $0.05\sim 0.2\text{J}/\text{cm}^2$ 변화시켰을 때의 수치해석 결과를 나타낸다. Fig. 4(a)에서 보듯, 일정한 세기 이하 ($0.05\text{J}/\text{cm}^2$) 조건에서는 입자의 최고 온도가 3000K 근방으로 증발온도에 미치지 못함을 발견할 수 있다. 하지만 나머지 조건에서는 4000K 이상을 보이며, 특히 높은 레이저 세기에서는 조사 에너지에 대한 온도 상승효과가 미비한 것으로 사료된다.

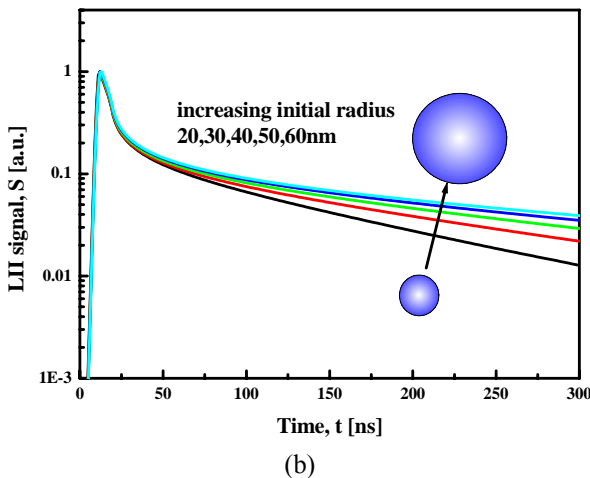
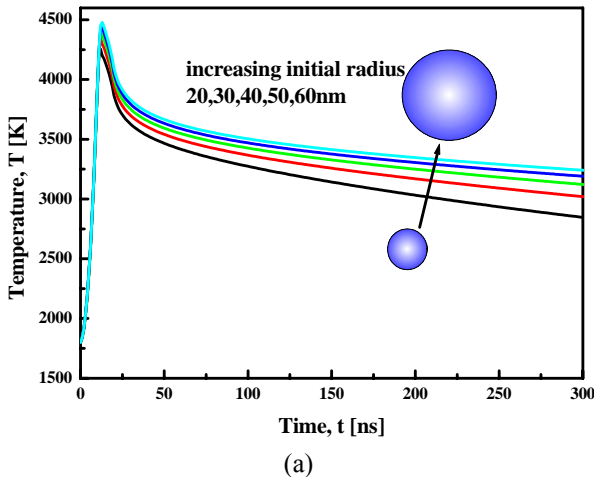


Fig. 3 Effects of particle size on soot temperature characteristics and cooling behavior ($F_L=\text{const}$, triangular profile)

Fig. 4(b)를 살펴보면, 레이저 조사 후 처음 30ns 동안은 레이저 세기가 클수록 신호의 감소 폭이 크다는 것을 발견할 수 있다. 이는 레이저 세기가 클수록 증발효과가 크다는 것을 의미한다. 반면에, 레이저 조사 후 100ns 이후에서는 조사 강도에 관계없이 거의 일정한 기울기를 나타냄을 알 수 있는데, 이는 전도 메커니즘이 지배적이며 증발, 복사의 영향은 무시할 수 있다는 것을 의미한다.

3.3 에너지향의 비교

Fig. 5는 $r_0=20\text{nm}$, $F_L=0.15\text{J}/\text{cm}^2$, $T_0=1800\text{K}$, 펄스지속기간 20ns 조건하에서의 열전달 메커니즘을 비교한 수치해석 결과를 나타내고 있다. Fig. 5(a), (b)를 비교해보면, 일정한 레이저 세기에서 입자크기가 클수록 증발효과는 다른 열전달 메커

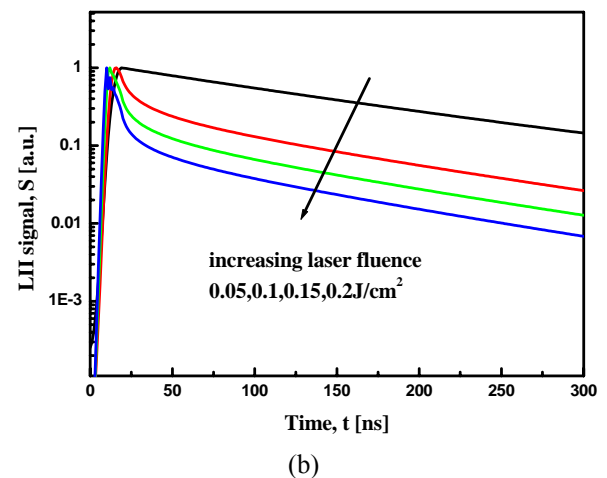
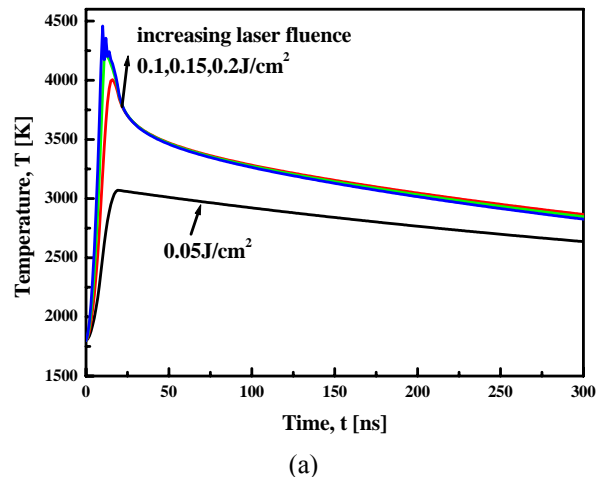


Fig. 4 Effects of laser intensity on soot temperature characteristics and cooling behavior ($r_0=\text{const}$, triangular profile)

니즘에 비해 상대적으로 오래 지속되며 복사영향 또한 커진다는 것을 발견 할 수 있다. 또한, Fig. 5(a), (c)로부터 $0.2\text{J}/\text{cm}^2$ 이하 범위에서는 레이저 에너지를 증가시켜도 열전달 메커니즘의 영향은 큰 변화가 없음을 발견할 수 있다. 다만 전술한 바와 같이, 큰 에너지 조건에서는 전도 효과가 지배적인 시간영역이 약간 빨라짐을 알 수 있다. 이상의 결과를 근거로 판단할 때, 20~50nm 크기의 입자가 존재하는 화염조건에서는 레이저 조사 후 100ns 지난 시점에서는 전도의 영향이 지배적

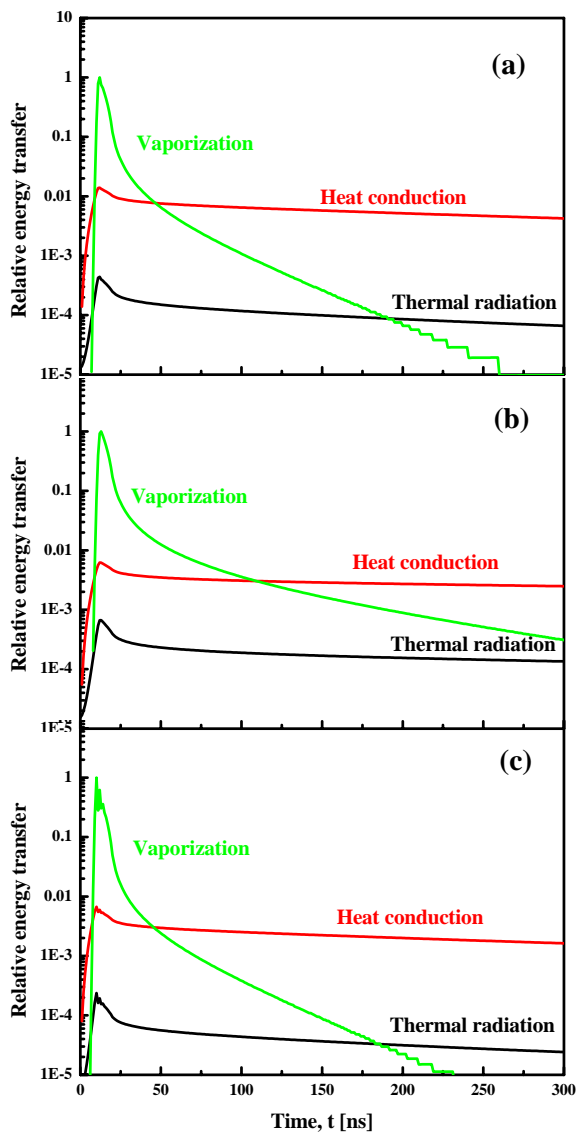


Fig. 5 Comparison of heat transfer mechanism at different conditions
 (a) $F_L=0.15\text{J}/\text{cm}^2$, $r_0=20\text{nm}$
 (b) $F_L=0.15\text{J}/\text{cm}^2$, $r_0=60\text{nm}$
 (c) $F_L=0.20\text{J}/\text{cm}^2$, $r_0=20\text{nm}$

이라는 것을 알 수 있다. 따라서, 두 시각에서 LII를 취득함에 있어 처음시점은 $t=100\text{ns}$ 로 선정함이 타당할 것으로 사료된다.

3.4 모델링의 타당성 검토

본 연구에서의 모델링 결과 타당성을 검토하기 위해 기존의 선행연구 결과와 비교, 분석하였다. Fig. 6에는 레이저 강도에 따른 LII 신호변화 결과를 나타내었다. 그림에서 보듯 $0.25\text{J}/\text{cm}^2$ 이하 범위에서는 본 저자들의 실험적 연구결과와 아주 잘 일치함을 발견할 수 있었다. 반면에, $0.25\text{J}/\text{cm}^2$ 이상의 레이저 세기에서는 수치해석 결과가 실험 결과와 큰 차이를 보이는데, 이는 큰 레이저 세기에서의 LII 신호가 심하게 변하는 것에 기인한 결과로 모델링을 수정, 보완해야 함을 나타낸다. 하지만 전 범위의 레이저 세기에서는 Dalzell & Sarofim⁽⁵⁾의 예측결과와 비교적 잘 일치함을 알 수 있다. 반면에, Ni 등의 실험적 결과와 Lee & Tien의 예측결과와는 차이를 보이는데 이는 수치 해석을 함에 있어 사용된 매연입자의 상수값, 특히 refractive index에 기인한 결과로 사료된다.

Fig. 7에 서로 다른 가스 온도조건에서 매연 입자 크기에 따른 LII 신호 감쇠 시간을 나타내고, 선행 연구결과와 비교하였다. 절대값에는 차이가 있지만 전반적인 경향은 잘 일치함을 발견할 수 있다. 이는 가스 온도가 매연 입자의 크기 예측함에 있어 미치는 영향을 나타낸 것으로 1800K를 가정한 경우 화염 위치에 따라 최대 30%정도 까지 차이가 날 수 있음을 의미한다.

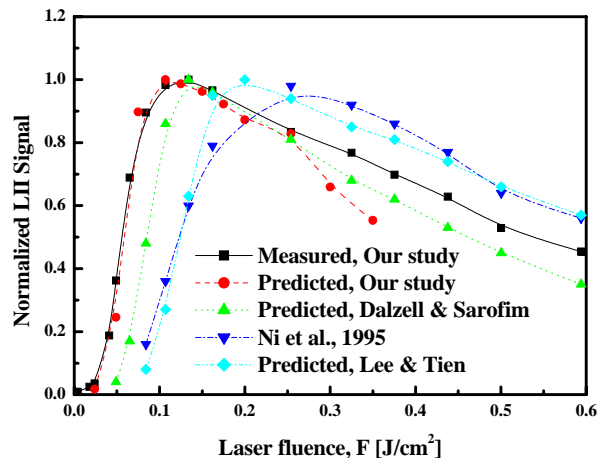


Fig. 6 Effect of the optical properties of soot on the prediction of the excitation curve

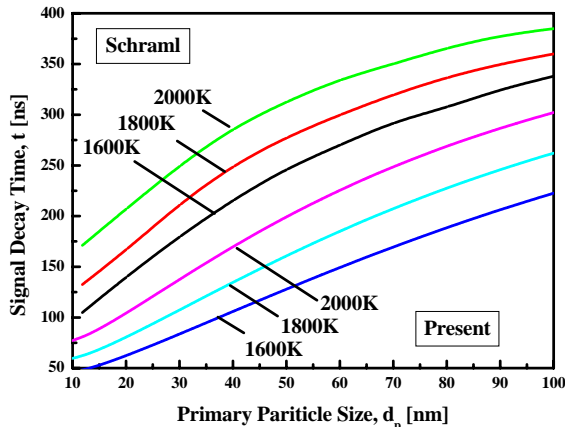


Fig. 7 Signal decay time as a function of primary particle size for three different gas temperatures

4. 결론

TIRE-LII 기법을 이용한 매연 입자 크기에 관한 수치해석 연구로부터 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 일정한 레이저 강도에서는 큰 입자일수록 천천히 냉각됨을 확인할 수 있었다.

(2) 레이저 조사 후 처음 30ns 동안은 증발효과가 큰 반면에, 100ns 이후에서는 조사 강도에 관계없이 전도 메커니즘이 지배적이었으며 증발, 복사의 영향은 무시할 수 있었다. 또한, $0.2\text{J}/\text{cm}^2$ 이하의 레이저 세기에서는 두 시점에서의 LII 신호비(ratio)는 일정하다는 것을 발견할 수 있었다.

(3) $0.2\text{J}/\text{cm}^2$ 이하 범위에서는 레이저 에너지를 증가시켜도 열전달 메커니즘의 영향은 큰 변화가 없음을 발견할 수 있다.

(4) 레이저 세기에 따른 LII 신호의 변화특성은 Dalzell & Sarofim의 예측결과와 비교적 잘 일치함을 알 수 있다. 다만, $0.25\text{J}/\text{cm}^2$ 이상의 레이저 세기에서는 모델링을 수정, 보완해야 할 것으로 사료된다. 또한, 가스 온도가 매연 입자의 크기 예측함에 있어 미치는 영향을 조사하였다.

후 기

본 연구는 2004년도 과학기술부 핵심연구 개발사업의 미래형 자동차 배기가스 제로화 기술개발의 지원으로 이루어진 것으로 지원을 해주신 관계자 여러분께 감사드립니다.

참고문헌

- (1) Lynn A. Melton, 1984, "Soot diagnostics based on laser heating," *Applied Optics*, Vol. 23, No. 13, pp. 2201-2208.
- (2) P. Roth and A. V. Filippov, 1996, "In Situ Ultrafine Particle Sizing by a Combination of Pulsed Laser Heating and Particle Thermal Emission," *J. Aerosol Sci.*, Vol. 27, pp. 95-104.
- (3) Stefan Will, Stephan Schraml, Katharina Bader, and Alfred Leipertz, 1998, "Performance characteristics of soot primary particle size measurements by time-resolved laser-induced incandescence," *Applied Optics*, Vol. 37, No. 24, pp. 5646-5658.
- (4) H. R. Leider, O. H. Krikorian and D. A. Young, 1973, "Thermodynamic properties of carbon up to the critical point," *Carbon*, Vol. 11, pp. 555-563.
- (5) D. R. Snelling, F. Liu, G. J. Smallwood, and Ö. L. Gülder, 2000, "Evaluation of the nanoscale heat and mass transfer model of LII : Prediction of the excitation intensity," NHTC2000-12132, *Proceeding of the NHTC 2000, 34th National Heat Transfer Conference*, Pittsburgh, PA, August 20-22.
- (6) F. M. White, 1991, *Viscous Fluid Flow*, McGraw, NewYork.
- (7) A. C. Eckbreth, 1977, "Effects of Laser-Modulated Particulate Incandescence on Raman Scattering Diagnostics," *J. Appl. Phys.*, Vol. 48, pp. 4473-4479.
- (8) Tobias Schittkowski, Bernd Mewes and Dieter Brüggemann, 2002, "Laser-induced incandescence and Raman measurements in sooting methan and ethylene flames," *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 4, 2063-2071.
- (9) H. Bladh and P. -E. Bengtsson, 2004, "Characteristics of laser-induced incandescence from soot in studies of a time-dependent heat- and mass-transfer model," *Applied Physics*, B 78, pp. 241-248.
- (10) Dasch, C. J., 1984, "Continuous-Wave Probe Laser Investigation of Laser Vaporization of Small Soot Particles in a Flame," *Appl. Optics*, Vol. 23, pp. 2209-2215.