

역 확산화염 내 매연입자에 의한 광소멸 특성 연구

임상철* · 이승훈* · 안태국* · 남연우** · 박선호*†

Light Extinction Characteristics of Soot Particle in Hydrocarbon Inverse Diffusion Flames.

Sangchul Lim*, Seunghoon Lee*, Teakook Ahn*, Younwoo Nam**, Sunho Park*†

ABSTRACT

Light extinction characteristics of soot particles in ethylene and propane inverse diffusion flames have been experimentally investigated. The measured data suggested that the refractive index of soot particles varies with light wavelength due to PAH contents existing during the soot growth process. The results showed that the scattering effect is less important as the size of secondary particles rarely affects the optical properties of the soot even when the size is large enough to deviate from Rayleigh assumptions.

Key Words : Soot, Light Extinction, Inverse diffusion flame, PAH, Wavelength

매연이 환경 및 보건에 미치는 영향으로 인해 대기로 배출되는 매연에 대한 규제가 시행되고 있다. 매연 배출을 저감하기 위해 매연의 생성 원리 및 정밀한 매연 계측을 위한 많은 연구가 수행되고 있으며, 특히 화염 내 매연의 계측을 위해서 빛을 화염 내부로 통과시킬 때의 광소멸량을 이용하는 계측법이 널리 사용되고 있다. 따라서 매연의 생성 메커니즘 및 특성 규명을 위해서는 매연입자의 광학적 특성을 보다 정확히 파악하여 광계측에 활용하는 연구가 필요하다.

임상철[1] 등은 레이저와 연속스펙트럼광원(continuous spectrum light source)을 사용하여 층류확산화염 내 매연입자의 광소멸 특성 파악을 위한 연구를 수행하였다. 매연입자의 크기가 입사광의 파장에 비해 충분히 작다는 가정(Rayleigh limit) 하에 식 (1), (2)의 흡수, 산란효율을 이용하여 광소멸값을 식 (3)과 같이 파장의 역수에 대한 직선식으로 표현하고, 이의 기울기를 이용하여 입사광의 파장에 따른 매연입자의 광소멸 특성을 알아보았다. 연구결과에 의하면 화염 내 매연배출영역에서는 매연입자의 굴절률이 파장 변화에 무관하고, 매연생성영역에서는 굴절률이 파장 의존성을 보인다고 보고하였다.

$$Q_{abs} \simeq 4 \left(\frac{2\pi R}{\lambda} \right) \text{Im} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \quad (1)$$

$$Q_{sca} \simeq \frac{8}{3} \left(\frac{2\pi R}{\lambda} \right)^4 \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \quad (2)$$

$$\ln \left(\frac{I_o}{I} \right) \simeq 6\pi L f_v \cdot \text{Im} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \cdot \frac{1}{\lambda} \quad (3)$$

본 연구에서는 화염 내 매연 생성영역의 광소멸이 빛의 파장에 의존하는 원인을 밝히기 위해 역 확산화염(IDF, inverse diffusion flame) 내 매연입자에 의한 광소멸을 측정하였다. 역 확산화염에서는 확산화염(NDF, normal diffusion flame)에 비해 매연 성장이 느리기 때문에 상대적으로 PAH의 함량이 높은 것으로 알려져 있으며 [2], 이로 인해 매연 굴절률이 파장에 의존할 가능성이 있다. 입사광이 에틸렌 및 프로판 역 확산화염을 통과한 후 소멸되는 빛의 세기(I , intensity)를 연속스펙트럼광원(Ocean Optics, DH-2000-BAL)과 분광기(Ocean Optics, HR-2000)를 이용하여 450-900 nm의 연속적인 파장 범위에서 측정하였다. 측정된 값을 $\ln(I_o/I)$ 값으로 표현하고 파장의 역수에 대한 그래프로 도시하였다. 또한 매연 입자의 크기가 광소멸의 파장 의존성에 미치는 영향을 알아보기 위해 화염 내 매연을 TEM grid를 이용하여 포집하고, 전자현미경(JEOL, JEM-2100F)을 이용하여 이미지를 획득하였다. TEM 이미지로부터 매연 단일입자(primary particle)의 직경 분포를 구하였다. 매연 2차 입자(secondary particle)의 공기역학적

* 단국대학교 기계공학과

** (사) 한국선급

† 연락처: sunhopark@dankook.ac.kr

Tel : (031)8005-3527 Fax : (031)8021-7215

크기(aerodynamic size) 분포는 입자크기분석장비(TSI, nano scan SMPS 3910 / Optical partic

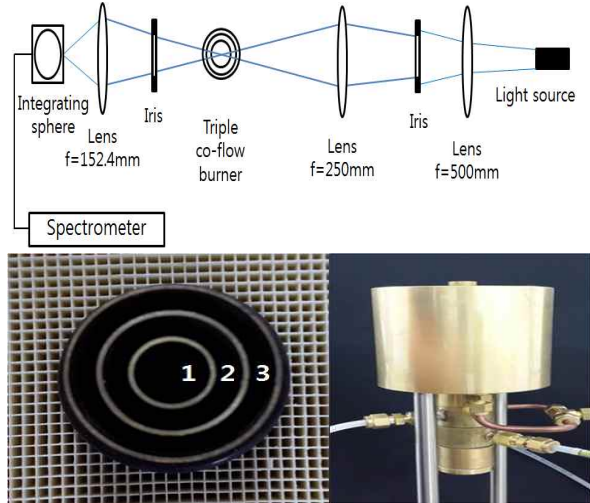


Fig. 1 Schematic of the continuous spectrum light source extinction and triple co-flow burner.

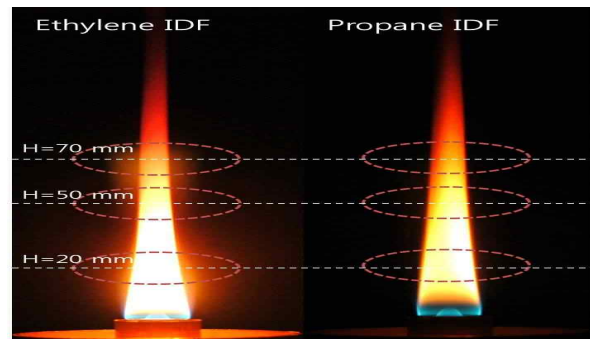


Fig. 2 Soot sampling heights in inverse diffusion flames.

le sizer 3330)를 사용하여 측정하였다.

Figure 1은 광소멸 실험 개략도와 삼중동축류 버너를 보여준다. Convex lens(Lambda, PCX 5 0.8U f250, f500, f152.4)를 사용하여 버너 중심에 초점을 맞추어 화염을 통과하는 빛의 직경이 최소가 되도록 하였다. 삼중동축류 버너는 중심노즐부터 각각 외경 6.35, 11.1, 15.88 mm, 두께 0.36 mm의 황동 노즐로 제작되었다. 삼중동축류 버너에 대한 자세한 설명은 안태국[3] 등에 기술되어 있다. 1번과 3번 노즐로 각각 공기 186, 1860 sccm(standard cubic centimeter per minute)을 공급하고 2번 노즐로 연료(ethylene, 160 sccm / propane, 106 sccm), 주위노즐로 질소 18.69 slpm(standard liter per minute)을 공급하여 역 확산화염을 형성하였다. Figure 2는 역 확산화염 내 매연을 TEM grid를 이용하여 포집한 위치를 보여준다. 화염 끝단이 열려 있고, 매연이 산화되지 않아 화염 밖으로 배출되는 것을 알 수 있다.

Figure 3, 4는 연속스펙트럼 광원의 광소멸을

이용하여 측정한 에틸렌 및 프로판 역 확산화염의 화염높이에 따른 광소멸 값 변화를 보여준다. 역 확산화염 내 광소멸 값의 파장 변화에 따른 특성을 검토하기 위해 Charalampopolos[4] 등이 제시한 매연입자의 굴절률을 파장의 함수로 표현한 식을 사용하여 그래프를 곡선으로 fitting하여 함께 나타내었다. 굴절률 $m = n - ki$ 일 때, n, k 는

$$n = 1.811 + 0.1263(\ln\lambda) + 0.027(\ln\lambda)^2 + 0.0417(\ln\lambda)^3 \quad (4)$$

$$k = 0.5821 + 0.1213(\ln\lambda) + 0.2309(\ln\lambda)^2 - 0.01(\ln\lambda)^3 \quad (5)$$

의 형태로 주어져 있다. 화염높이 증가에 따라 그래프의 기울기, 곧 광소멸 값이 증가하는데, 이는 역 확산화염 내에서는 매연의 산화현상이 거의 일어나지 않으므로 화염높이 증가에 따라 화염 내 매연이 많아지기 때문으로 생각된다. 매연이 화염 밖으로 배출되는 화염높이 70, 80 mm에서의 광소멸 값은 거의 비슷한 것을 알 수 있다. 모든 화염높이에서 광소멸 측정 그래프가 직선이 아닌 곡선의 형태인데, 이는 매연입자의 높은 PAH의 함량으로 인해 매연 굴절률이 입사광의 파장에 의존하기 때문으로 판단되나, 식(3)

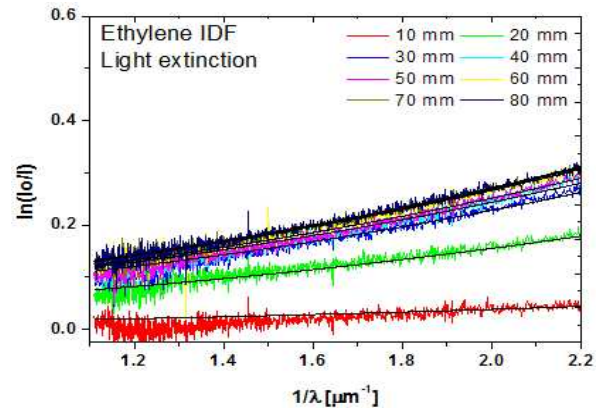


Fig. 3 Light extinction in ethylene inverse diffusion flame.

Table 1 Primary particle diameter of ethylene and propane soot particles.

Fuel	Flame height (mm)	Average diameter (nm)	Standard deviation
Ethylene	20	23.8	2.0
	50	24.2	2.2
	70	24.9	2.4
Propane	20	16.5	1.7
	50	22.9	1.9
	70	23.0	2.1

에서 배출된 산란효과가 매연입자의 크기 때문

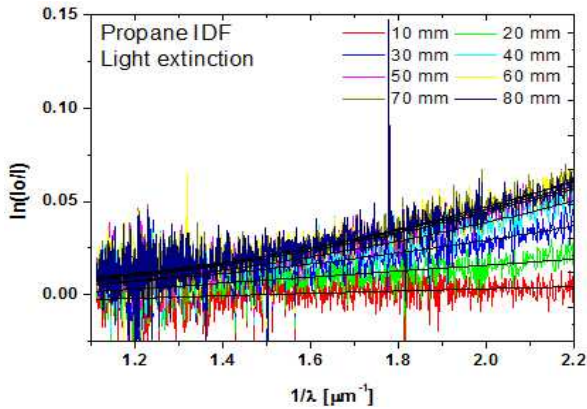


Fig. 4 Light extinction in propane inverse diffusion on flame.

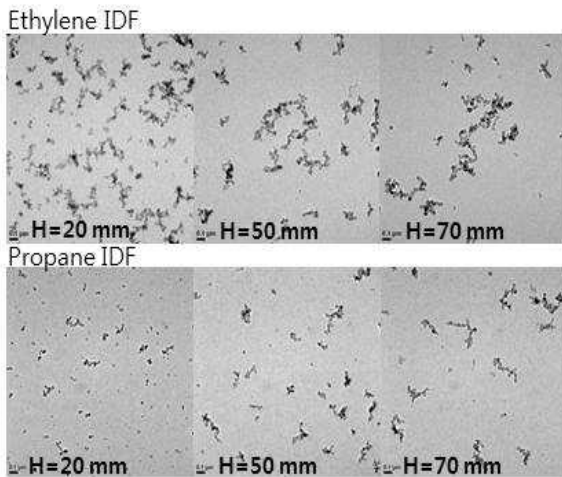


Fig. 5 TEM images of ethylene and propane soot particles at flame height of 20, 50, 70 mm.

에 무시할 수 없게 되었기 때문일 수도 있다. 따라서 화염 내 매연입자 크기분석을 통해 산란이 광소멸에서 차지하는 비중을 알아보았다.

매연입자크기에 따른 산란의 영향을 알아보기 위해 화염 내 매연의 TEM 이미지를 촬영하였다. Figure 5는 에틸렌 및 프로판 역 확산화염의 매연 TEM 이미지를 보여준다. Table 1 은 TEM 이미지로부터 측정된 단일 입자 직경의 평균과 표준편차를 나타낸다. 에틸렌 역 확산화염의 경우 화염높이에 따라 단일 입자의 크기가 거의 비슷하지만, 프로판 역 확산화염의 경우 화염높이 20 mm에서는 다소 작은 것을 알 수 있다. 또한 화염높이 증가에 따라 하나의 2차 입자를 구성하는 단일 입자의 수가 증가하는 것을 알 수 있다. 이 결과들은 화염 시작 위치에서 매연이 생성되어 성장하고, 화염높이 증가에 따라 단일 매연입자가 계속 성장하여 입자직경이 일정수준에 이르게 된 후 단일 입자 간의 결합으로 2차 입자를 형성하는 과정을 보여준다. 에틸렌에 비해 프로판이 화염 내 더 긴 구간에서 단

일 입자가 성장함을 알 수 있다.

Figure 6은 에틸렌 및 프로판 역 확산화염의 화염높이마다의 단일 입자 크기를 이용하여 계

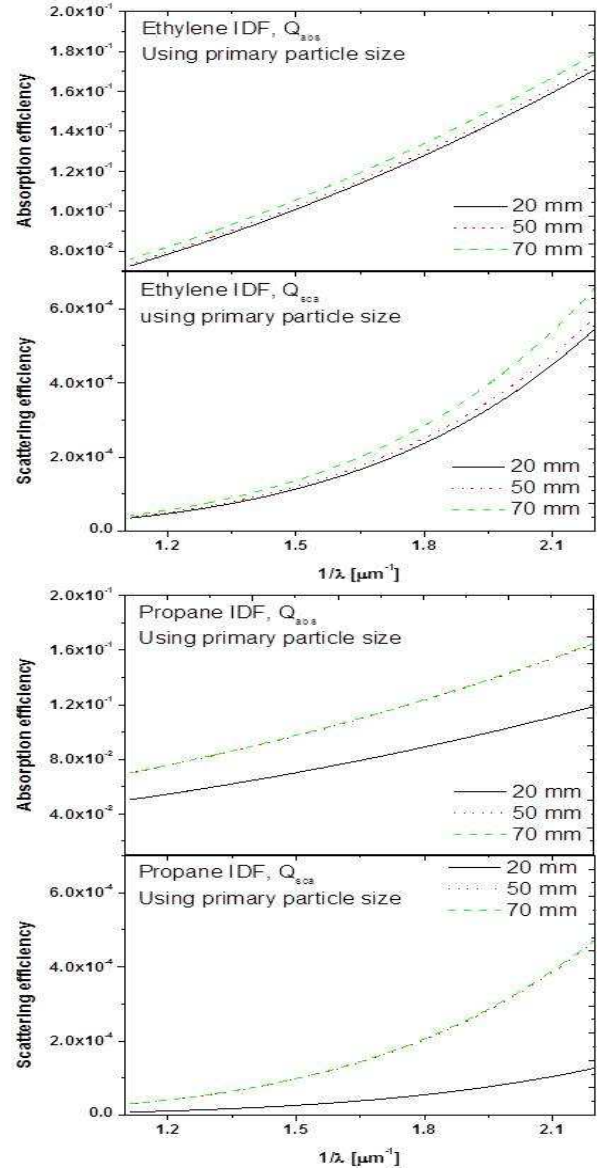


Fig. 6 Absorption and scattering efficiency of ethylene and propane inverse diffusion flames using primary particle size.

산한 $1/\lambda$ 에 따른 흡수효율과 산란효율의 변화를 보여준다. 흡수효율에 비해 산란효율의 값이 매우 작은 것을 알 수 있다. 만약 단일 입자가 매연입자의 광학적 특성에 주된 영향을 미치게 된다면, 광소멸 실험 시 산란의 영향은 무시할 수 있을 것이다.

Figure 7은 입자크기분석 장비를 이용하여 화염 외부로 배출되는 매연의 2차 입자 크기를 측정 후, R/λ 에 따른 흡수, 산란효율을 계산한 결과를 보여준다. 에틸렌 역 확산화염의 경우 산란효율 값이 0에 가까워 산란의 영향이 적은 것

으로 보이지만, 프로판 역 확산화염의 경우 짧은 파장 구간에서는 산란효율 값이 흡수효율과 비슷해지는 것을 알 수 있다. 만약 2차 입자의

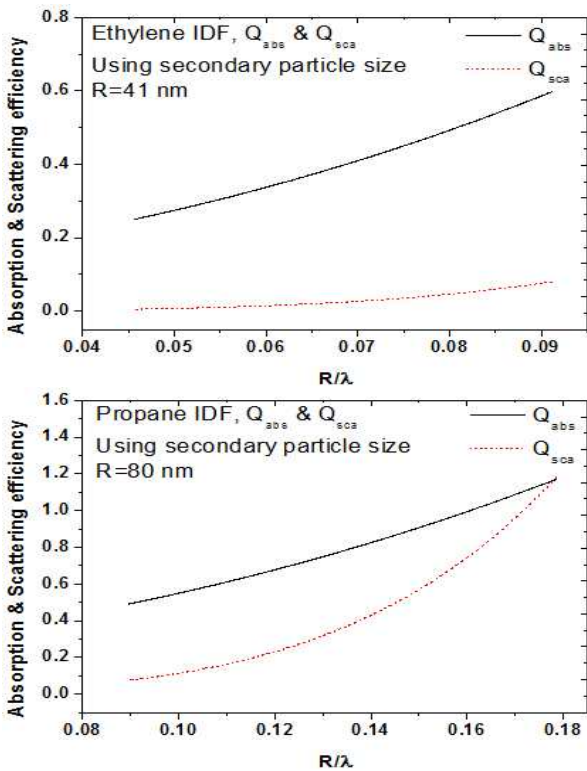


Fig. 7 Absorption and scattering efficiency of propane inverse diffusion flames using secondary particle size.

크기가 매연입자의 광학적 특성에 주된 영향을 미치게 된다면, 광소멸 실험 시 흡수효율 뿐만 아니라 산란효율 역시 고려해야 하고, 광소멸 그래프가 산란의 영향으로 곡선을 보여야 할 것이다.

Figure 8은 이승훈[5] 등이 삼중동축류 버너를 사용하여 프로필렌 층류확산화염의 배출 매연의 2차 입자 크기를 측정된 결과($R=95\text{ nm}$)를 이용하여 계산한 R/λ 에 따른 흡수, 산란효율의 변화를 나타낸다. 이 크기를 가지는 입자의 경우 Rayleigh limit의 적용이 불가하며, 계산 상 입사광의 파장이 540 nm 이하일 때 흡수효율 보다 산란효율 값이 더 커진다. 그러나 실제 측정결과에 의하면 배출매연의 광소멸 그래프는 직선의 형태로서 산란의 영향이 거의 존재하지 않았다. 따라서 매연 입자의 광소멸에 대한 Rayleigh 가정은 적어도 2차 입자의 크기에 무관하게 적용 가능함을 알 수 있다.

화염 내 매연의 생성과 성장과정동안 매연입자에 의한 광소멸 특성을 알아보기 위해 역 확산화염을 이용하여 실험을 수행하였다. 실험결과 모든 화염높이(10-80 mm)에서 광소멸 그래프가 곡선의 모습을 보였다. 따라서 역 확산화염 내 존재하는 PAH나 매연생성과정에서의 화

학성분들에 의해 매연입자의 굴절률이 입사광의

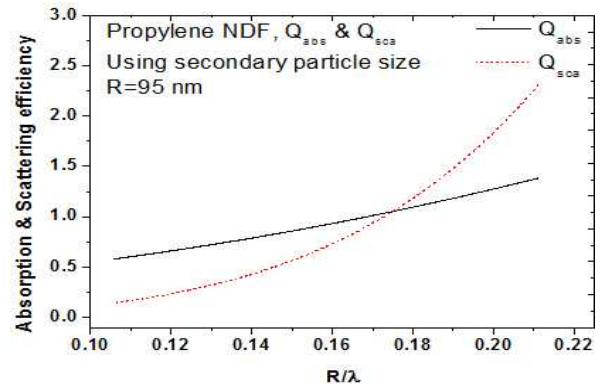


Fig. 8 Absorption and scattering efficiency of propylene diffusion flame using secondary particle size.

과장에 따라 변화하는 것이라 생각된다. 또한 광 산란의 영향이 광소멸에 미치는 영향을 알아보기 위해 매연 TEM 이미지와 입자크기분석장비를 이용하여 매연의 단일, 2차 입자의 크기를 측정하였다. 측정 결과 산란효과가 광소멸의 파장 의존성에 미치는 영향은 적으며, 이로부터 2차 입자의 크기가 매연 입자의 광학적 특성을 결정하는데 미치는 영향이 크지 않다는 것을 알 수 있었다.

후 기

본 연구는 해양수산부의 해양안전 및 해양교통시설기술개발사업의 “선박배출 대기오염원(PM, BC) 기후변화 영향평가 및 저감기술 개발” 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고 문헌

- [1] 임상철, 안태국, 박선호, 남연우, 이원남, “레이저와 연속광원을 이용한 매연입자 광 소멸의 파장 의존성”, 제50회 KOSCO SYMPOSIUM 논문집, 2015, pp.73-76
- [2] 오광철, 이은도, 신현동, 이의주, 2004, “에틸렌/공기 역확산 화염에서의 초기 매연입자의 성장 특성,” 한국연소학회지, Vol. 9, No. 2, pp.38-44
- [3] 안태국, 이원남, “파일럿 화염을 이용한 희석제 첨가 화염의 안정화”, 제 47회 KOSCO SYMPOSIUM 논문집, 2013, pp.47-50
- [4] H.chang, T.T. Charalampopoulos, “Determination of the wavelength dependence of refractive indices of flame soot”, Royal Society Publishing, 1990, pp. 577-591
- [5] 이승훈, 안태국, 박선호, 남연우, 이원남, “매연의 부유상태 광소멸과 침적에 의한 알베도 변화의 비교 측정”, 제 50회 KOSCO SYMPOSIUM 논문집, 2015, pp.77-80