

화염과 저온플라즈마의 상호작용에 관한 연구

차민석** · 이상민** · 김관태* · 정석호**

Interaction between a Flame and a Non-thermal Plasma

Min Suk Cha, Sang Min Lee, Kwan Tae Kim, and Suk Ho Chung

ABSTRACT

Interaction between flames and non-thermal plasmas of DBD type has been experimentally investigated. Vigorous streamers were observed under flame conditions because of the increase of reduced field (electrical) at high temperature as well as the seeding of free electrons and ions generated inside the flame. Flame lengths were significantly shortened as the applied voltage increased on account of intense mixing by ionic winds and soot-induced flows. Flame luminosities severely decreased under plasma conditions, which means the reduction of soot, since the residence time was reduced because of the flame shortening. Temperature and major species concentrations measured by FTIR were not changed despite the plasma generation, which shows overall chemistries were not affected by non-thermal plasmas.

Key Words : non-thermal plasma, streamer, flame height, soot, ionic wind

1. 서 론

약 1950년대부터 플라즈마를 포함한 전기장에 의한 연소현상의 변화는 많은 연구자들의 관심의 대상이었다 [1, 2]. 이들의 주된 관심사는 주로 플라즈마에너지에 의한 연소가스의 엔탈피 증가에 따른 화염 온도의 상승이나 화염의 강도 증가에 있었으며, 매연의 저감 및 예혼합화염의 안정화 영역 증대에 대한 연구 또한 활발히 진행되어 왔다 [1-5]. 아아크(arc) 방전을 이용할 경우에는 저전압 고전류 방식으로 고가의 전력공급장치가 필요할 뿐만 아니라 과도하게 전기적인 에너지가 많이 들어가는 단점이 있으며, 스트리머(streamer)를 이용한 저온 플라즈마의 경우에도 기존의 연구자들이 주로 금속 전극과 DC 혹은 AC 전압을 이용한 점을 미루어 볼 때, 강하고 균일한 스트리머를 활용하기 힘들 뿐만 아니라 쉽게 아아크로 진행하게 되는 단점을 가지고 있

다고 할 수 있다.

그동안 플라즈마 발생분야에도 많은 발전이 있어왔으며, 최근에는 저온 플라즈마를 이용한 유해가스 처리분야에서는 상용화된 오존 발생장치에서 흔히 볼 수 있는 유전체 장벽 방전(Dielectric Barrier Discharge, DBD) 방식이 상용화가 가능한 것으로 판단되고 있는 실정이다. 이와 같은 DBD 방식은 상대적으로 저렴한 AC 전원을 쓸 수 있으며, 그 구조에 따라 공간적으로 균일한 플라즈마를 발생시킬 수도 있게 된다 [6]. 유전체의 역할로 말미암아 아아크의 진행을 근본적으로 차단할 수 있으며, 여타 저온 플라즈마 발생기구와 동일하게 전자만 선택적으로 가속되어 모든 분자의 에너지 상태를 높이게 되는 고온 플라즈마와는 달리 고전압 저전류 방식으로 상대적으로 낮은 에너지를 이용하여 이온 및 각종 라디칼들을 쉽게 만들 수 있는 장점이 있다.

이에 본 연구에서는 DBD 방식의 저온 플라즈마 발생장치와 간단한 구조의 기초화염을 결합하여, 이들 플라즈마 반응과 화염의 상호작용에 관하여 고찰하고자 한다.

* 한국기계연구원

† mscha@kimm.re.kr

** 서울대학교 기계항공공학부

2. 실험장치

실험장치는 크게 화염/플라즈마 반응기, 가스 공급장치, 전력공급장치 및 각종 계측시스템으로 이루어져 있다. 저온 플라즈마의 발생과 화염의 관찰을 용이하게 하기 위하여 유전체로 석영관을 선정, 화염/플라즈마 반응기를 제작하였으며 그 개략도를 Fig. 1 에 나타내었다. 연료 공급을 위한 안쪽 노즐은 외경 10 mm, 내경 8 mm 의 석영관을 사용하였다. 동축류가 공급되는 바깥쪽 노즐은 외경 30 mm, 내경 27 mm 의 석영관을 사용하였으며, 기연가스 sampling 시 충분한 혼합을 위하여 후류 부분에 수축부를 두었다. 연료로는 에틸렌 및 프로판을 사용하였고, 동축류로는 압축공기를 유량 15 l/min 으로 일정하게 공급하였으며, 각각의 유량은 질량유량계를 이용하여 제어하였다. 예혼합 및 확산화염을 고려 대상으로 하였으며, 각각의 화염조건은 아래 Table 1 과 같다.

Table 1. Flow conditions

case	flame	Q_{fuel}	$Q_{coflowair}$
1	C ₂ H ₄ diffusion	190 ml/min (6.3 cm/s)	15 l/min (51 cm/s)
2	C ₃ H ₈ diffusion	120 ml/min (4.0 cm/s)	
3	C ₃ H ₈ premixed	100 ml/min	

* $Q_{air,premixed} = 15 \text{ l/min}$, $\phi = 1.59$

저온 플라즈마 발생 방법의 하나인 DBD 방전을 위해서는 두 개의 전극과 이들 전극의 한 쪽 혹은 양쪽에 유전체층이 있어야 한다. 전극의 구조는 대칭 혹은 비대칭 어느 경우도 가능하며, 펄스 코로나와는 달리 전극간의 거리에는 제한이 있는 편이다.

Fig. 1 에 나타낸 바와 같이 본 연구에서는 선-실린더 형 (wire-cylinder type) 을 이용하여 비균일 전기장을 통한 스트리머 코로나를 발생시키게 된다. 노즐 가운데의 스테인레스 봉 (직경 1 mm) 과 외부 노즐을 감싸고 있는 너비 20 mm 구리 망 (mesh, 1 mm × 1 mm) 을 전극으로 이용하였으며, 구리 망은 접지되어 있고, 스테인레스 봉은 교류 고전압에 연결된다. 전원공급장치의 인가 전압은 2.95 - 20 kV 이고, 주파수는 400 Hz 이며, 발생되는 플라즈마의 직접사진을 Fig. 2 에 나타내었다. 반응기에 투입되는 전력을 측정하기 위하여 Lissajous 도형을 이용하였으며,

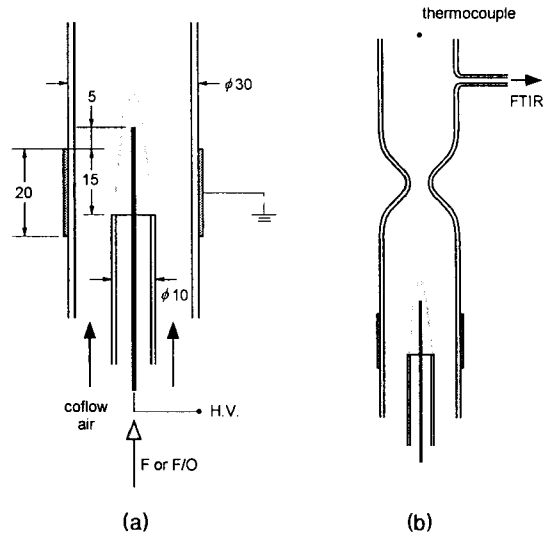


Fig. 1 Schematic diagram of (a) the fused-silica burner and (b) the FTIR measurement setup

전압과 미소방전 패턴 분석을 위하여 디지털 오실로스코프 (LeCroy; LT344, 500MHz, 500Ms/s) 와 전류 probe (Tektronix, A6303 current probe) 를 사용하였다. 화염 및 각종 이미지는 디지털 카메라 (Olympus, C-3030) 를 사용한 직접사진이다.

기연가스의 성분은 FTIR 분광계 (Fourier Transform InfraRed Spectrometer, Bruker, vector33) 를 이용하여 분석하였으며, 온도측정은 K-type 열전대를 통하여 이루어졌다.

3. 결과 및 토의

3.1 화염이 저온 플라즈마에 미치는 영향

화염이 저온 플라즈마에 미치는 영향을 알아보기 위해서 동축류 공기만을 공급하는 경우와 화염이 존재하는 경우에 플라즈마 상태의 변화를

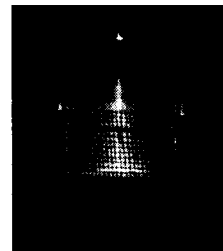


Fig. 2 Direct photograph of air non-thermal plasma at $V_{app} = 18.5 \text{ kV}$ (exposure time = 1 sec)

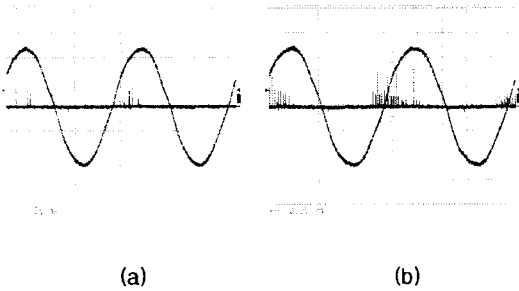


Fig. 3 Voltage and current diagram at $V_{app} = 14.4$ kV of (a) air and (b) ethylene diffusion flame (one compartment: 100mA/1kV \times 0.05ms)

살펴보았다. Fig. 3 은 오실로스코프로 측정한 인가전압과 전류 파형으로, 15 l/min 공기만 공급되는 경우 (Fig. 3a) 와 에틸렌 확산화염 (case 1) 이 존재할 때 (Fig. 3b) 를 각각 나타내었다. 그래프에서 볼 수 있듯이 인가전압은 두 경우 모두 14.4 kV 로 동일한 경우이지만 스트리머 코로나에 의한 미소방전 (micro discharge) 의 전류 파형은 서로 상이함을 알 수 있다. 전류 파형에서 나타나는 개개의 피크들은 스트리머가 발생함에 따라 나타나는 것으로 상온의 공기보다 화염이 존재할 때 전류 피크들이 더욱 많이 발생하는 것으로부터 스트리머의 발생 빈도가 큰 것을 알 수 있으며, 이를 통하여 화염이 존재하는 경우에 더 강한 플라즈마 상태를 만들 수 있으며 투입되는 전기에너지 또한 증가하게 됨을 예측할 수 있다. Fig. 4 에 반응기에 투입되는 전력을 Lissajous diagram 을 이용하여 측정된 결과를 나타내었다. 화염의 존재로 인하여 방전개시 (breakdown) 전압이 매우 낮아짐을 알 수 있으며, 활발한 스트리머의 발생으로 말미암아 투입되는 전력 또한 증가함을 알 수 있다.

이와 같이 화염이 존재할 때 낮은 방전개시 전압과 높은 투입전력을 보이는 특성은 화염의 열

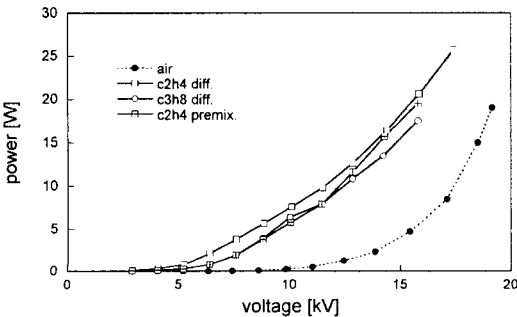


Fig. 4 Effect of applied voltage on plasma intensity

발생에 의한 밀도의 감소로 설명할 수 있다. 일반적으로 가스층의 절연과파에 해당하는 방전은 reduced field 로 정의되는 전기장의 세기와 기상의 수밀도의 비 (E/n) 와 관계가 있는 현상으로 온도증가에 따른 밀도의 감소는 reduced field 의 증가를 의미하므로 더 작은 전기장으로도 동일한 reduced field 를 만들 수 있게되며, 이에 따라 낮은 인가전압에서도 방전이 시작되게 된다. 이는 낮은 기체 밀도로 인해 전자 및 이온의 평균 자유 행로 (mean free path) 가 증대 되는 것으로도 이해될 수 있으며, 화염에 의한 자유 전자와 이온의 증가 또한 활발한 스트리머 형성에 기여하는 것으로 판단된다.

참고로 Fig. 3 에서 볼 수 있듯이 미소방전의 대부분이 양의 전압이 인가될 때 발생하고 있는데, 이로부터 본 연구에서 사용한 버너구조에서는 음 (negative) 의 코로나 보다 양 (positive) 의 코로나가 우세함을 알 수 있다.

3.2 저온플라즈마에 의한 화염의 변화

Fig. 5 와 6 에 인가전압에 따른 화염의 변화를 확산화염과 예혼합화염에 대하여 각각 나타내었다. Fig. 5 는 에틸렌 및 프로판 확산화염에 대한 직접사진으로, 일반 확산화염 (a, e), 2.95 kV 의 전기장이 인가되었을 때 (b, f), 18.5 kV 의 전기장과 강한 스트리머가 발생될 때 (c, g) 와 이 경우의 위에서 바라본 화염의 모양 (d, h) 을 나타낸다. Fig. 5b 와 f 의 경우에는 투입되는 전력이 0.1 W 이하로 플라즈마 발생에 의한 효과가 무시할 수 있으며, 이때 나타나는 화염의 변화는 전기장만에 의한 것으로 볼 수 있다. 이와 같이 전기장만 인가되어도 화염의 길이가 짧아지

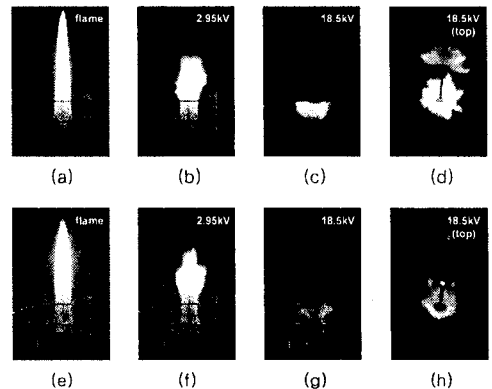


Fig. 5 Variation of flame shape with increasing applied voltage: (a)~(d) ethylene diffusion flame, (e)~(h) propane diffusion flame

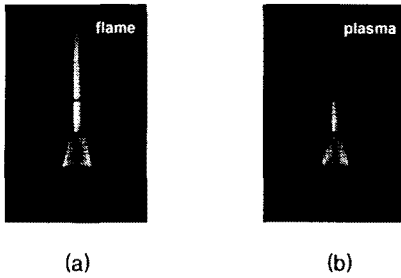


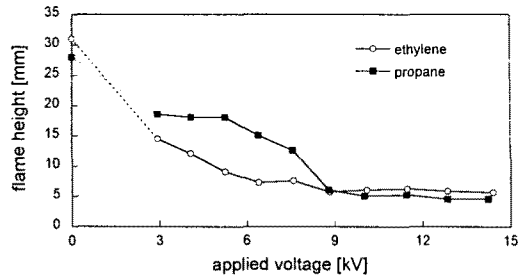
Fig. 6 Variation of flame shape of propane premixed flame with and without non-thermal plasma

는 것을 알 수 있으며, 화염의 끝단이 벌어지며 매연입자가 화염면을 통해 배출되는 모습을 보이게 된다. 반면 18.5 kV의 전압에서는 10 W 이상의 투입전력으로 활발한 플라즈마 상태가 되는데(c, g), 이때 화염길이는 1/5 이상 감소하며 화염 내부의 발광이 크게 줄었음을 알 수 있는데, 이는 화염 내 매연량이 감소했음을 의미한다. 한편, Fig. 5d와 h에서 볼 수 있듯이 화염의 모양은 왕관 모양과 유사하고 반경 방향으로는 식염관에 까지 이르고 있으며, 육안으로는 화염의 소멸(extinction) 흔적을 찾아볼 수 없었다.

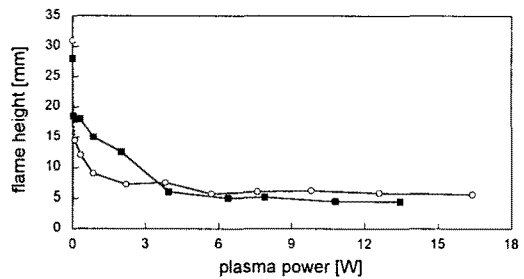
그러나 Fig. 6에 나타났듯이 프로판 예혼합 화염(case 3)의 경우에는 약간의 요동(fluctuation) 및 약간의 길이 차이만 보일 뿐 확산화염과 같이 큰 변화는 관찰할 수 없었다.

이와 같은 확산화염의 길이 변화를 인가전압 및 투입전력에 따라 Fig. 7에 나타내었다. 적은 투입전력에서 화염의 길이는 급격히 줄어들게 되고 5 W 이상의 전력에서는 플라즈마 강도가 증가해도 더 이상 화염길이의 변화가 관찰되지 않는다. 이를 통하여 화염길이의 감소에는 전기장이 더 큰 역할을 함을 알 수 있으며, 길이 변화가 포화상태에 이르는 것은 전체 시스템이 제한(confine)되어 있는 영향도 배제할 수 없을 것으로 판단된다. 그러나 전기장만으로는 매연 생성량이 크게 줄어들지 않으며 플라즈마에 의해서 급격한 매연의 감소는 이루어진다.

화염의 길이 감소 및 매연의 저감은 이온풍(ionic wind)에 의한 강한 혼합(mixing)에 기인하는 것으로 사료된다. 전기장(electric field)이 화염에 미치는 영향에 대해서 과거에 많은 연구가 이루어져 왔다 [1, 2]. 만약 전극의 양단에 DC 전압을 걸어주게 되면 화염은 음극(cathode) 쪽으로 휘게 된다. 이는 고온의 화염면에서 생성되는 양이온 화학종들이 음극쪽으로 이동하면서 중성 기체 분자에 모멘텀을 전달하여 음극방향으로의 속도성분이 발생하기 때문인데, 이러한 현상을 이온풍이라고 한다. 전기장의 방



(a)



(b)

Fig. 7 Variation of flame length of ethylene and propane diffusion flame with respect to (a) the applied voltage and (b) power

향이 확산화염의 방향과 수직을 이룬다면 이온풍으로 인해 반경방향 속도성분이 발생하여 반경방향 확산속도보다 큰 대류속도를 일으키게 되고, 이에 따라 반경방향 확산시간과 축방향 대류시간의 균형에 의하여 결정되던 일반 확산화염의 길이는 새로운 균형 메카니즘에 따라 재결정되게 된다.

그러나 본 실험의 전원이 교류 전원임을 감안하면 반경방향으로 화염이 요동하여야 할 것으로 판단되나 현상적으로는 화염의 폭이 커지는 결과를 보여주고 있다. 화염에 의하여 발생하는 이온은 대부분이 양이온으로 가운데 전극이 양의 전압을 나타내면 이온풍은 제트의 중심에서 반경방향 바깥쪽으로 일어나게 되고, 전극이 음의 전압을 띠면 이온풍의 방향은 제트의 중심쪽으로 향하게 될 것이다. 그런데 제트의 중심은 미연지역으로 상대적인 고밀도 영역이 되고 더욱이 포텐셜유동의 싱크(sink)와 같은 유동 구조로 말미암아 중심쪽으로 향하는 이온풍의 강도는 상대적으로 크지 않을 것으로 판단된다. 이에 따라 전극이 양의 전압일 때 양이온들의 이온풍에 의한 효과로 화염의 폭이 넓어지게 되고, 플라즈마의 강도가 더욱 세지면 다수의 스트리머에 의하여 플라즈마 반응지역의 이온 농도가 급증하게 되어

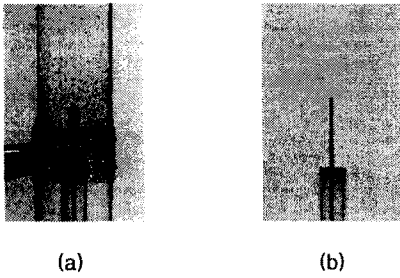


Fig. 8 Soot deposition on the electrode and the tube after 1 sec voltage application with V_{app}
= (a) 2.85 kV and (b) 14.4 kV

증대된 이온풍의 세기에 따라 화염길이는 급격하게 감소하게 되는 것으로 보여진다. Fig. 3에서 언급했듯이 스트리머의 발생이 중심전극이 양의 전압을 띠 때 활발한 것이 이를 뒷받침 하고 있다.

Fig. 5에서 에틸렌, 프로판 확산화염 모두 플라즈마 파워가 5 W 이하인 지역, 즉 전기장의 영향이 우세한 지역에서는 매연 입자가 화염면을 뚫고 바깥으로 배출되는 모습이 관찰된다. 플라즈마 강도가 더 강해지면 이러한 현상이 발견되지 않는다. Fig. 8은 에틸렌 확산화염에서 인가 전압을 각각 2.95 kV (0.08 W), 18.5 kV (16.4 W)로 가하여 1분간 상태를 유지한 후 버너의 상태를 보여준다. 인가전압이 2.95 kV인 경우에는 매연입자들이 전극봉에 침전되어 직경 4 mm 정도의 매연덩어리를 형성하고 외부 석영관 주위에도 화염내의 매연입자들보다는 훨씬 큰 매연입자들이 침전된 것을 관찰할 수 있다. 이러한 현상은 매연입자의 이온화와 관련되어 있다. 기존의 연구에 따르면 화염내 매연입자의 20% 정도가 이온화된 상태로 존재하고 있다 [7]. 약한 전기장에서도 화염면을 통하여 매연입자가 배출되는 것은 이온화된 매연입자가 전기장에 의하여

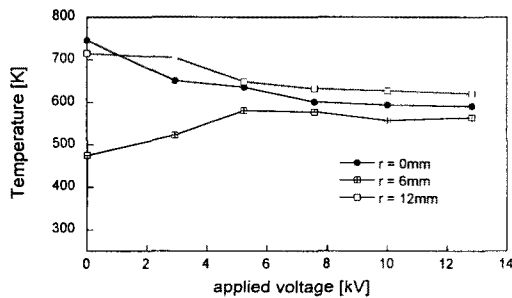


Fig. 9 Downstream temperature of ethylene diffusion flame at various radial positions with increasing applied power

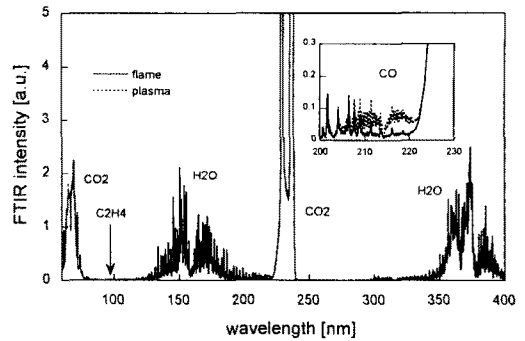


Fig. 10 FTIR result of ethylene diffusion flame with and without applying plasma

가속되어 충분히 산화하는 시간을 갖지 못하거나 이온화된 매연입자들의 움직임이 교류 전기장에 의한 충돌 횟수의 증가로 인하여 촉진되어 매연입자의 크기가 커지는 것으로 생각된다. Fig. 8에서 외부 노즐에 침전된 매연입자의 크기는 화염내 매연입자의 크기 (10~100 nm) 보다 훨씬 큰데, 이는 화염 내부 혹은 외부에서 매연의 응집이 이루어지고 있다는 것을 입증한다. 이온화된 매연 입자의 존재는 매연입자로부터 유도된 유동장도 수평방향 속도성분을 증가시키는 요인이 될 수 있음을 보여준다. 따라서 전기장에 의한 화염길이의 감소는 이온풍과 더불어 매연입자로부터 유도된 유동 모두에 영향을 받는 것으로 볼 수 있다.

반면 플라즈마의 강도가 더욱 커지면 전극봉 아래부분에만 약간의 매연이 침전될 뿐 매연덩어리들이 관찰되지는 않는다. 이는 화염길이의 감소로 인해 매연입자가 성장할 수 있는 체류 시간이 감소하여 매연입자가 생성되지 못하거나 (프로판 화염), 생성되더라도 충분한 크기로 성장하지 못해서 (에틸렌 화염) 화염면에서 모두 산화되기 때문이다. 따라서 플라즈마의 강도가 큰 경우 화염면을 통한 매연의 배출이 관찰되지 않는다. 그러나 매연의 저감이 화염길이 감소에 따른 결과인지, 아니면 플라즈마 상태 및 전자의 움직임이 매연 생성 메커니즘에 직접 작용하는지는 현재로는 판단하기 힘들며, 추후에 연구 계획 중에 있다.

플라즈마로 인한 화염면의 심한 왜곡이 연소상태에 미치는 영향을 알아보기 위하여 에틸렌 확산화염에서 FTIR을 이용하여 화학종의 농도를, 열전대를 사용하여 온도분포를 측정하였다. Fig. 9는 플라즈마가 발생한 후류에서 온도를 측정할 결과이다. 유동장의 가운데에서는 인가전압의 증가에 따라 온도가 점차로 감소하며, 이와는 반대

로 유동장의 가장자리에서는 인가전압에 따라 온도가 점차로 증가하게 된다. 이는 이온풍을 포함한 전기장에 의한 2 차유동으로 인해 화염영역에서부터 충분한 혼합이 이루어져 비교적 균일한 온도 분포를 나타내기 때문으로 판단된다. Fig. 1(b) 에서처럼 충분한 믹싱 후에 측정된 온도는 플라즈마를 인가했을 때 20 K 정도 작게 나타나는데, 이는 온도장의 균일화로 벽면의 온도가 높아져 석영관 외부로의 열손실이 커졌기 때문으로 생각되며, 따라서 전반적인 온도의 변화는 크지 않은 것으로 판단된다. Fig. 10 는 파장에 따른 FTIR 측정 결과를 나타내고 있다. 플라즈마의 유무에 관계없이 연료로부터 발생하는 피크는 관찰되지 않았으므로 화염의 왜곡에도 불구하고 정상적인 연소상태가 유지되는 것으로 판단되며, 주요 반응물인 이산화탄소 및 수증기의 농도 변화는 관찰되지 않았다. 단지 CO 의 농도가 증가하는데, 이때의 농도는 500 ppm 정도로 거시적인 연소에는 영향을 미치지 못하는 정도이다.

4. 결론

저온플라즈마와 화염의 상호작용을 알아보기 위해 선-실린더형 DBD 플라즈마를 에틸렌/프로판 확산 및 예혼합 화염에 발생시켰다. 예혼합화염에서는 화염형상의 큰 변화가 관찰되지 않았으나 확산화염의 경우 화염길이와 매연량이 급격하게 감소하였다. 화염길이의 감소는 이온풍 및 매연유도 유동장에 의한 반경방향속도성분의 증가 때문이다. 매연감소는 화염길이 감소에 의한 체류 시간의 감소 때문이다. 전기장의 영향이 우세한 지역에서는 이온화된 매연 입자들이 화염면을 통해서 배출되고 또한 전극봉에 침전되는 현상이 나타났다. 플라즈마의 강도가 센 경우 매연의 배출 및 집진 현상이 발생하지 않았는데, 이는 화염길이의 감소로 인해 매연입자의 성장이 충분히 이뤄지지 않기 때문이다. FTIR 을 이용한 농도 측정 및 열전대를 이용한 온도 측정 결과 플라즈마가 화염에 작용하는 경우 주요 화학종의 농도 및 온도변화가 작은 것으로 나타났고 이로부터 플라즈마 존재 여부에 따라 연소상태가 변하지 않는 것을 확인할 수 있었다.

후 기

본 연구는 국가지정연구실 사업 및 한국기계연구원의 자체연구사업의 지원으로 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] Lawton, J., and Weinberg, F., *"Electrical Aspects of Combustion"*, Clarendon Press, 1969
- [2] Weinberg, F., *"Advanced Combustion Methods"*, Academic Press, 1986
- [3] Lee, J.-B., Hwang, J.-H., and Chun, B.-H., *Proceed. ISNPT-3*, pp.24-29, 2001
- [4] Ohisa, H., Kimura, I., and Horisawa. H., *Combust. Flame* 116, pp. 653-661, 1999
- [5] Saito, M., Arai, T., and Arai, M., *Combust. Flame* 119, pp. 356-366, 1999
- [6] Cha. M.S., Lee, W., Song, Y.-H., Lee, J.-O., Shin, W.-H., and Kim, S. J., *Proceed. ISNPT -3*, pp. 225-227, 2001
- [7] Balthasar, M., Mauss, F., and Wang, H., *Combust. Flame* 129, pp. 204-216, 2002