

평면 레이저 유도 형광법(PLIF)을 이용한 CH₄/O₂/N₂ 혼합화염의 NO 농도 분포 가시화에 관한 연구

박경석* · 이세환**

A Study on the Visualization of NO Concentration Distributions in CH₄/O₂/N₂ Premixed Flames by PLIF

Kyoung-suk Park, Sei-hwan Lee

Key Words: PLIF(평면 레이저 유도 형광법), concentration distributions(농도분포), visualization(가시화), interference(간섭), premixed flame(혼합화염)

Abstract

In this study, quantitative measurement of nitric oxide concentration distributions visualization were investigated in the laminar CH₄/O₂/N₂ premixed flame by Planar laser-induced fluorescence (PLIF). The NO A-X (0,0) vibrational band around 226nm was excited using a XeCl excimer-pumped dye laser. Selecting an appropriate NO transition minimizes interference from Rayleigh scattering and O₂ fluorescence.

The measurements were taken in CH₄/O₂/N₂ premixed flame with equivalence ratios varying from 1.0~1.6, and a fixed flow rate of 3slpm. NO was found to produce primarily between an inner premixed and an outer nonpremixed flame front, and total NO concentration is raised when equivalence ratios increase. These results suggest that prompt NO is likely to contribute to NO formation in CH₄/O₂/N₂ premixed flame. Furthermore, this trend was well matched with previous works.

1. 서 론

최근 지구의 환경문제로 인하여 강화되는 환경 규제로 엔진, 보일러, 발전 설비 등과 같은 연소 장치에 의해 발생하는 대기 오염을 줄이는 문제는 전 학계의 주요 관심사가 되고 있다. 그 중에서도 NO (nitric oxide)는 주요한 공해 배출물이다. NO_x는 환경오염 및 환경적 스모그나 산성비의 주원인이 되고 있어 저감 대책에 중요성이 강조되어지고 있다. 질소산화물은 환경적 스모그의 생성과 성층권의 오존 파괴등과 관련된 환경

적으로 중요한 연소생성물이다. 연소과정에서 생성되는 NO의 양을 최소화하기 위해서는 NO의 생성에 관련하여 순간적인 분포를 측정하는 것이 필요하다. 이러한 연구 중 핵심은 NO 농도의 정확한 직접적(*in situ*) 측정이다. 이는 과다한 NO의 양이 생성되는 국소적 위치를 알아낼 뿐만 아니라 컴퓨터 모델링 설계를 검증하는 데에도 이용될 수 있다.

실제의 장치들에서 화학 반응, 교란에 의한 혼합 및 액체의 증발들이 상호 작용 할 때는 정확한 모델링을 할 수 없다. 그래서 이론적으로 모델링한 경우는 실제 실험과는 일치하지 않는 경우가 많다. 특히, 씨머커플이나 샘플링 프로브를 이용한 온도 계측이나 화학적 분석은 이들에 의해 반응 촉진, 질량 교란을 가져올 수 있으며, 공

* 회원, 경희대학교 기계·산업시스템공학부

** 경희대학교 대학원

간적·시간적 분해능이 나쁘다. 따라서 연소전단 및 유해 배기ガ스 저감을 위한 연구를 하는데 있어, 비침투적이며 측정 매질에 영향을 주지도 않으며 공간 및 시간 분해능이 좋은 레이저 기법과 이를 통해 얻어진 결과를 이용하여 배기ガ스를 저감하는 기술이 대부분이다.

NO 농도의 정량적 계측을 위해서는 일반적인 방법으로 프로브(probe) 샘플링 법이 많이 사용되어지고 있다. 그러나 이 방법은 비교적 적은 양의 농도계측에 용이하고, 다루기 쉬우며, 가격이 저렴한 장점이 있으나, 실제 계측시 연소장에 영향을 주는 등의 단점이 있다. 이에 대해 레이저를 이용한 광학적 기법은 연소 환경에서 유동장이나 연소 과정을 방해하지 않으면서, 공간적 시간적으로 좋은 분해능을 갖기 때문에 연소에 의해 형성되는 NO의 농도를 정량적으로 측정하는데 널리 사용되고 있다. 대표적인 방법으로 레이저 유도 형광법 (Laser Induced Fluorescence LIF)⁽¹⁾이 여러 가지 형태로 개발되어 적용되어지고 있다. 특히 근래에는 파장가변형 엑시머 레이저(tunable excimer laser)와 같은 고출력 레이저의 보급으로 PLIF(Planar LIF)법⁽²⁾과 같은 2차원의 평면 분포도 측정할 수 있다. 이러한 엑시머 레이저를 이용한 NO의 측정⁽³⁾은 1988 Wodtke 등이 ArF 엑시머 레이저로 193nm 파장대의 NO D-X (0,1) 밴드를 이용하여 NO를 점 측정하였고⁽⁴⁾, 1990년에 P. Andresen 등이 동일 레이저로 연소실내에 공기와 NO와 같은 연소ガ스의 평면 분포를 측정하였다. 이후 1994년 Battles 등이 색소 레이저로 226nm 파장의 NO A-X (0,0) 밴드를 이용하여 버너 화염에서 NO를 정량적으로 점 측정하였다. 그후 1996년 Schulz 등이 KrF 엑시머 레이저로 247.9nm의 NO A-X (0,2) 밴드를 이용하여 퍼스터형 가시화 앤진에서 NO의 평면 분포를 정량적으로 측정해 냈다.

본 연구에서는 엑시머 레이저를 이용하여 연소장 및 유동장내의 특성을 해석하고 가시화를 위한 계측 방법을 확립하는데 연구 목적을 두었다. 이를 위하여 평면 레이저 유도 형광법 (PLIF : Planar Laser-Induced Fluorescence)을 이용하여 일반적인 동축 버너를 대상으로 2차원적으로 연소 중간 생성물의 농도 분포 측정을 행하여 그 특성을 해석하였고, 226nm의 XeCl 엑시머 Pumped 라이저에 Spherical Lens를 이용해

평면 레이저빔을 만들어, CH₄/O₂/N₂ 혼합화염내의 NO의 농도 분포를 가시화하여 해석하였다.

2. 실험장치

본 연구에서 사용된 실험 장치에 대한 전체적인 개략도는 Fig. 1 와 같다. 화염의 형광은 XeCl 엑시머 레이저(Lambda Physik, COMPex-205)를 펌핑원으로 하는 Dye 레이저(Lambda Physik, SCANmate 2)를 사용하여 측정하였다. A-X(0,0) 밴드의 광장을 발생시키는 레이저 시스템은 XeCl 엑시머 레이저, Dye 레이저, UV Doubler로 구성되었다. Dye 레이저에 사용된 용액은 용매인 Methanol에 색소인 Coumarin 2를 녹인 것이다. Table. 1은 색소로 사용하는 Coumarin 2의 특성을 나타낸 것이다.

Dye 레이저(Coumarin 2)를 pumping 하기 위하여 XeCl 엑시머 레이저로부터 나오는 308nm의 빔을 사용하였다. Dye 레이저를 거친 450 ~ 452nm의 광장을 Doubling Crystal에 의해 필요 한 225 ~ 226nm의 빔을 얻게 되며, 화염에서 발생하는 형광신호는 레이저 진행 방향에 수직으로 놓여 있는 ICCD 카메라 (Princeton Instruments, ICCD 576G/RB-E)에 의해 측정된다. ICCD 카메라는 한 개의 MCP가 부착된 증폭기가 CCD와 광파이버(optical fiber)로 결합되어 있으며, 화소 수는 1152×298이다. ICCD용 펄스 생성기는 같은 회사의 PG-200이며, 실험시 게이트 폭은 100ns, 게이트 지연은 2070ns로 설정하였다.

Detector 제어기는 ST-138이며, 레이저광과 ICCD 카메라와의 동기는 지연 펄스 발생기 (Stanford Research System, DG-535)를 이용하였다.

사용된 버너는 동축 버너로서 중앙의 직경이 4.4mm의 관에 연료가 나온다. 유량은 습식 가스 미터로 보정된 MFC(mass flow meter)를 사용하여 H₂와 Air양을 각각 조절하였다. 주변수로는 당량비와 노즐로부터의 수직 거리이며 전체 유량은 5slpm이다. 측정되는 화염의 위치는 버너 노즐의 상단 끝부분에서 8~10mm 정도에 위치 한 곳에서 측정하였다.

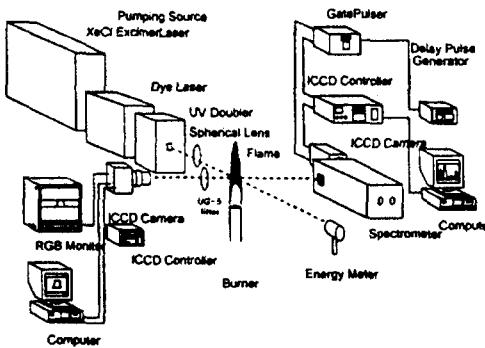


Fig. 1 Sample calibration curve for PLIF measurements of NO

Table. 1 Lasing Performance

Pump		Dye Laser Characteristics			
source	Wave length (nm)	Peak (nm)	Range (nm)	Effi c (%)	Solvent
XeCl - Excimer	308	448	432~475	15	Methanol
Nitrogen	337	444	425~475	-	Methanol
Nd:YAG	355	450	435~467	10	Methanol

2.1 ICCD Camera

본 실험에 사용된 측정장치 ICCD는 Princeton Instruments사에서 제작한 것으로서 ICCD 카메라, 제어기 및 gate pulser로 구성되어 있다.

ICCD 카메라는 CCD와 MCP 그리고 이들을 광학적으로 서로 연결시켜 주는 광파이버로 구성되어 있으며 MCP 영상 증폭기의 높은 이득률과 CCD array의 낮은 잡음은 하나의 광전자에도 반응할 수 있도록 되어 있다. 외부의 광원으로부터 ICCD camera에 입력된 광자는 광음극을 거쳐 전자로 변환되고 이 전자들은 quartz 창을 통하여 MCP에 보내져 증폭된다. 증폭된 전자들은 다시 인광판을 거쳐 형광 신호로 변환되고 광파이버를 통하여 576×384 의 화소수를 갖는 CCD array로 입력된다. 제어기는 CCD로부터 입력된 아날로그 전기 신호를 430Hz, 16bit 디지털 신호로 변환시키는 역할을 하며 컴퓨터와의 interface를 통하여 CCD로부터 취득된 영상을 모니터 상에 출력시킨다. gate pulser는 고전압 gate pulse

발생기의 기능과 레이저 등 주변 기기의 동기 및 자연 발생기(delay generator)의 역할을 수행하고 시스템 전체를 동기 시키는 기능을 한다.

slow-scan ICCD 카메라의 특성을 Table. 2에 간단히 표시하였다.

Table. 2 Specifications of Slow-Scan ICCD Camera

Items	Specifications
Typical Gating Values	$\geq 6\text{ns}$ (up to $2\text{ms} \sim 3\text{ms}$)
Gating On/Off Ratio	$> 5 \times 10^6 : 1$ typically 50 counts
Variable Gain Setting	/photoelectron
Spatial Resolution	< 4 pixels @ FWHM of spectral line

3. 실험 방법

3.1 광학계의 설정

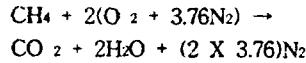
본 연구의 실험에서는 초점거리가 긴 실린더형 Convex 렌즈를 이용하여 평면광을 만들었다. 사용된 볼록 실린더형 렌즈(Cylindrical Lens)의 초점 거리는 50mm이고, 초점 거리 위치에서 평면광은 길이가 약 13.75mm이고 폭은 약 50μm 정도이다. 실제 유동장에 입사될 때에는 처음에 레이저 광의 양쪽면의 광을 슬릿(10mm)을 이용하여 공간 필터링을 한 후, 평면광을 만들었다. 본 실험에 사용된 모든 렌즈는 재질이 UV 광의 통과율이 매우 높은 quartz로 만들어졌으며 통과율을 더욱 높이기 위해 AR(Anti Reflection) 코팅되어 있다.

3.2 유량의 제어

유량은 습식 가스 미터로 보정된 MFC(mass flow Controller)를 사용하여 CH₄, O₂, N₂ Air양을 각각 조절하였으며, 사용된 BROANKHOST 사의 MFC는 100, 10, 5, 3, 1slpm이다. 메탄 혼합 화학의 경우 전체 유량을 3 slpm (standard liters per minute)로 일정하게 유지하였다.

3.3 당량비의 조절

예혼합기의 당량비(equivalence ratio) ϕ 를 맞추기 위하여 이론(stoichiometric) 당량비일 때의 메탄/공기 화학반응식을 고려하였다.



이 반응식에 의하면 ϕ 에 따른 메탄과 공기 ($\text{N}_2/\text{O}_2=3.76$)의 물 분율 XM , XA 는 각각 다음과 같다.

$$X_M = \frac{\phi}{\phi + 9.52}$$

$$X_A = \frac{9.52}{\phi + 9.52}$$

이상 기체식으로부터 같은 온도, 압력 조건에서 물 분율의 비 $XM : XA$ 가 유량의 비 $QP : QA$ 와 같다. 따라서 전체유량 $QT = QM + QA$ 를 일정하게 하고 QM 과 QA 를 모두 변화시키면서 당량비 ϕ 를 조절하였다. 이 때 QT 의 오차는 통상 MFC의 제어 오차 이내이다. Table. 3는 메탄과 공기의 유량값으로 본 실험에서는 전체유량 (QT)을 3.0slpm으로 일정하게 유지하였다.

Table. 3 Flow Rate of CH_4/Air (slpm)

QT		ϕ			
		1.0	1.2	1.4	1.6
3.0 slpm	CH_4	0.285	0.335	0.384	0.431
	N_2	2.145	2.105	2.066	2.029
	O_2	0.571	0.560	0.550	0.540

3.4 여기파장 선정

LIF계측을 위해서는 적절한 진동회전 전이 (Rovibronic Transition)에 부합하는 파장에서 계측해야 할 화학종이 여기 되어야 한다. Fig. 2는 NO 분자가 형광을 내도록 여기 시키는데 사용되는 전이인 $D-X(0,1)$, $A-X(0,0)$, $A-X(0,2)$ 밴드를 표시한 것이다. 이와 같이 여기 밴드를 정한 후 회전전이(rotational transition)를 선정하면 최종적인 여기 파장이 결정된다. 또한 여기 파장 선정시 다른 전이와 겹치지 않고, 인접 전이와 충분히 분리되고, 온도에 대한 Boltzmann 분포가 민감하지 않아야 하며, 특히 O_2 에 의한 간섭을 배제하여야 하며, 충분한 S/N(Signal/noise)비를 가져야 한다. 이상과 같은 여기 파장을 선정하기 위해, Dye Laser의 파장을 225.0nm~226.4nm 범위에서 0.002nm 간격으로 가변시켜서 스펙트로미터와 ICCD 카메라로 NO와 O_2 의 형광신호를 검

출하였고, 중요 검출 범위에서는 0.001nm 단위로 신호를 검출하였다. Fig. 3은 화염에 레이저 평면 광의 진행을 보여주고 있다. 검출된 NO와 O_2 의 형광신호를 비교하여 가장 적절한 여기파장을 선정한다.

3.5 NO의 농도 분포 계측

당량비를 1.0, 1.2, 1.4, 1.6으로 변화시켜가며 레이저를 조사하여 나오는 NO의 형광신호는 레이저 진행방향에 수직으로 놓여있는 스펙트로미터에 부착된 ICCD 카메라 (Princeton Instrument-s, ICCD 576G/RB-E)로 스펙트럼을 검출하였고, $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{N}_2$ 화염내 발생하는 형광 영상을 ICCD 카메라를 사용하여 측정하였다. 측정된 영상정보는 화상 처리 프로그램⁽⁵⁾을 이용하여 데이터 처리되었다.

각각의 당량비에서 레이저를 각각 조사하여 형광영상과 $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{N}_2$ 의 농도 분포를 가시화하여 측정하였다.

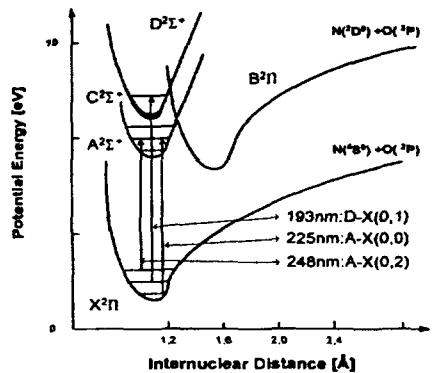


Fig. 2 Potential Energy Diagram of NO

4. 실험결과

4.1 당량비 1.0, 1.2, 1.4, 1.6의 NO 농도 분포 가시화 비교

아래의 그림 (Fig. 4, 5, 6, 7)에서 당량비에 따른 농도 분포를 보면 당량비가 증가함에 NO 농도도 증가함을 알 수 있으며, 각각의 경우 화염면(flame front) 부근에서 NO 농도가 급속히 생성되기 시작하여 기연 영역으로 갈수록 NO 농도

가 서서히 증가하다 감소하는 것을 알 수 있다.

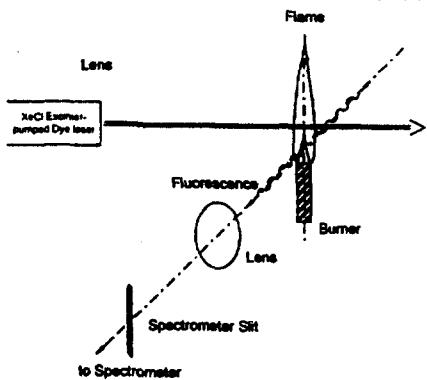


Fig. 3 Laser Sheet Illumination to Measure
Fluorescence of Flame

Fig. 4, 5, 6, 7에서 보면 중앙부근에 NO농도의 큰 감소를 보이는 것은 화염구조의 변화 때문으로 고려된다. 이론상으로는 당량비 변화에 따른 NO농도를 비교해 보면 위의 결과와 반대로 당량비 1.0일 때 NO가 더 많이 발생되는 것으로 나타나게 되나, 본 연구에서 사용한 등축류 버너에서는 과농화염에서 후류에 확산화염이 재 생성되어 화염의 온도가 당량비 1.0인 경우에 비해 크게 감소하지는 않는 것으로 판단된다. 결국 과농한 화염에서는 Thermal NO외에 prompt NO에 의한 영향이 크게 작용한다. 이런 경향은 다른 선형 연구결과와도 잘 일치한다.⁽⁶⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽⁹⁾ NO가 화염면에 따라 NO가 생성이 많이 생기지만 Fig. 4, 5, 6, 7을 보면 중앙 부근에 많은 NO 분포가 생기는 것을 볼 수 있다. 이 이유는 일직선의 레이저를 평면 범으로 만들어주는 Cylindrical Lens가 실험에서 계산된 약 13.75mm 길이의 평면 범을 균등하게 레이저 에너지 분배를 못 해준 결과로 생긴 오차 같다. 화염과 렌즈의 초점거리 등 수정을 하여 보안을 하면 더 좋은 결과를 얻을 수 있을 것 같다.

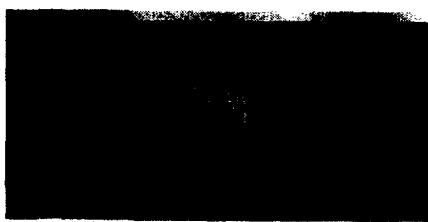


Fig. 4 Visualization of NO Concentration
Distributions at $\phi=1.0$

Distributions at $\phi=1.0$

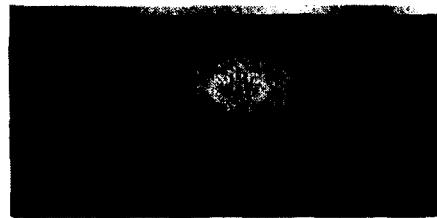


Fig. 5 Visualization of NO Concentration
Distributions at $\phi=1.2$



Fig. 6 Visualization of NO Concentration
Distributions at $\phi=1.4$



Fig. 7 Visualization of NO Concentration
Distributions at $\phi=1.6$

4.2 당량비 $\phi=1.4$ 에서의 Y 축방향 NO 농도 분포 가시화 (Y=68 ~ Y=188)

Fig. 6은 CH₄ 혼합화염에서 당량비 $\phi=1.4$ (CH₄=0.384, N₂=2.066, O₂=0.550)에 관한 실험결과를 표시하고 있다. 본 결과를 보다 상세히 분석하기 위하여 당량비가 1.4일 때 X는 307로 고정하고 X축으로 Y=68에서 20 pixels 씩 이동하여 Y=188까지 NO의 크기를 그래프로 가시화 하였다. Fig. 8 ~ Fig. 14 까지 다음과 같이 표시된다.

Fig. 8 ~ Fig. 14에서 보는 바와 같이 NO의 값은 Y=68에서는 별 차이가 없다가 Y 값이 증가하면서 기연부근 양쪽으로 NO의 값이 증가하는 것을 볼 수 있다. Y=128 부근에서는 NO농도의

차이를 가장 크게 확인 할 수가 있다. 실험 결과를 보면 화염면 부근에는 NO 생성이 활발히 일어나고 있다. Y=128에서 Y=188로 갈수록 NO 농도 분포 그래프가 감소하는 것을 확인할 수 있다. 레이저 평광법의 세로 길이가 더 크면 Y의 이동 범위를 증가시킬 수 있다. 그림을 통해 알 수 있듯이 기연부근에서 NO 생성이 약한 것을 알 수 있었다. 기연부분은 역시 NO 의 생성이 희박함을 알 수 있었다.

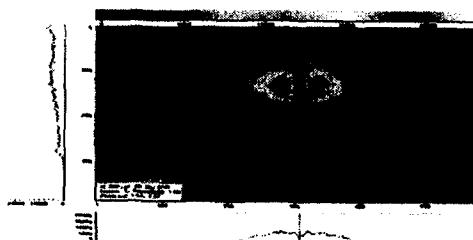


Fig. 8 Visualization of NO Concentration Distributions at $\Phi=1.4$ ($x=307$, $y=68$, int=4741)

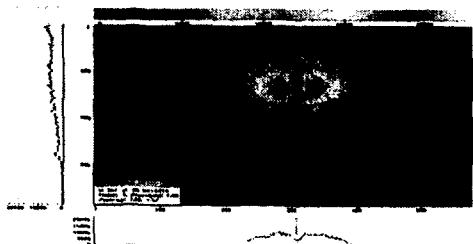


Fig. 9 Visualization of NO Concentration Distributions at $\Phi=1.4$ ($x=307$, $y=88$, int=5313)

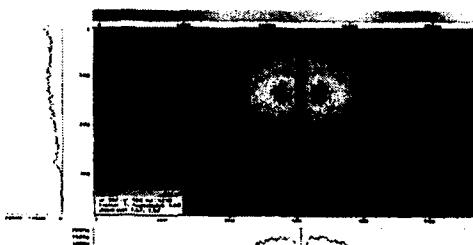


Fig. 10 Visualization of NO Concentration Distributions at $\Phi=1.4$ ($x=307$, $y=108$, int=5136)

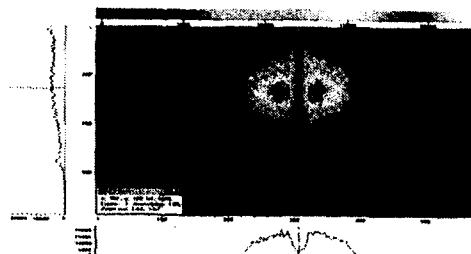


Fig. 11 Visualization of NO Concentration Distributions at $\Phi=1.4$ ($x=307$, $y=128$, int=5095)

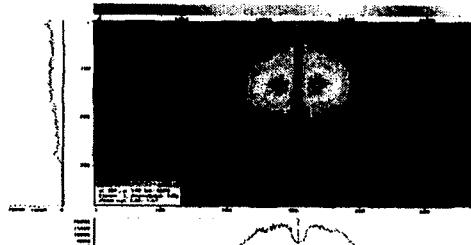


Fig. 12 Visualization of NO Concentration Distributions at $\Phi=1.4$ ($x=307$, $y=148$, int=5078)

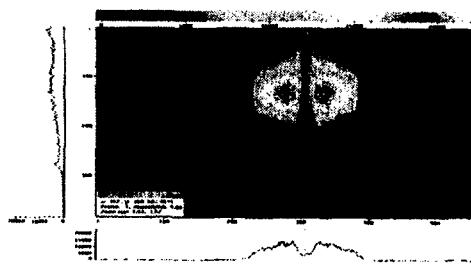


Fig. 13 Visualization of NO Concentration Distributions at $\Phi=1.4$ ($x=307$, $y=168$, int=4511)

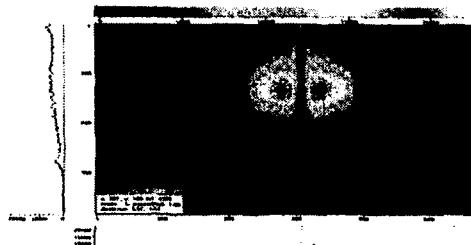


Fig. 14 Visualization of NO Concentration Distributions at $\Phi=1.4$ ($x=307$, $y=188$, int=4367)

5. 결론

본 실험에서는 XeCl 액시머 pumped 다이레이저와 두 개의 ICCD 카메라를 이용하여 A-X (0,0)에 226nm에서 spherical lens를 이용하여 평면빔을 낼 수 있는 PLIF법을 사용하였다. NO 농도 분포의 가시화를 위하여 O₂ 같은 다른 간섭선 호흡 최소화시킬 수 있는 적절한 여기 라인을 설정하였으며, 측정된 NO의 형광 신호를 통해 당량비 1.0, 1.2, 1.4, 1.6의 CH₄ 혼합화염에서 NO 농도 분포를 평평 레이저 유도 형광법(Planar Laser Induced Fluorescence)으로 가시화 시킬 수 있었다. 이상의 실험을 통하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) NO의 측정을 위한 여기라인 선정을 위하여 NO의 여기 스펙트럼을 측정하였으며, 다른 간섭으로 인한 영향을 최소화시켰다.

(2) 충류 CH₄ 혼합화염에서 NO 농도 분포를 당량비 1.0, 1.2, 1.4, 1.6에서 가시화할 수 있었으며, 각 당량비마다 X축과 Y축의 이동으로 각 위치의 NO 분포를 상대적인 값으로 알 수 있었다.

(3) 당량비가 다른 각각의 경우에서 NO 농도는 화염면(flame front) 부근에서 급속히 생성되기 시작하여, 기연 영역에 갈수록 NO 농도가 서서히 증가하다가 감소하는 것을 알 수 있었다. 이 결과를 통하여 농후한 화염의 경우 발생하는 NO는 대부분 prompt NO의 영향임을 알 수 있었다.

(4) 실험의 결과로만 보았을 때 이론과 달리 실제로는 농후한 화염에서는 당량비가 1.0에서 1.6으로 증가할수록 NO의 생성이 증가하는 것을 알 수 있었다.

후기

본 연구는 산업자원부에서 시행한 에너지·자원기술개발사업의 "산업용 고부하버너 연소에서의 NO_x형성 및 저감에 관한 연구" 일부로 수행되었으며 본 연구 실험을 위하여 생상기술 연구원의 김경수박사, 전성호박사, 김성옥군의 적극적인 도움을 주심에 감사드립니다.

참고문헌

1. A. C. Eckbreth, "Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species", 2nd Edition, Gordon and Breach Publishers, (1996)
2. R. K. Hanson, J. M. Seitzman, and P. H. Park, "Planar Laser-induced Fluorescence Imaging of Combustion Gases", Applied Physics B Vol. 50, pp 441~454, (1990)
3. E. W. Rothe, P. Andresen "Application of Tunable Excimer Lasers to Combustion Diagnostics : A Review", Applied Optics Vol.36, pp 3971~4033 (1997)
4. A. M. Wodtke, L. Huwel, H. Schluter, G. Meijer, P. Andresen, and H. Voges, "High-sensitivity Detection of NO in a flame using a tunable Arf laser", Optics Letters Vol. 13, pp. 910~912, (1988) pp.431~443 (1972)
5. Luque, J. and Crosley, D.R., 1999, LIBRARY : Database and Simulation Program (v. 1.6), SRI International Report MP 99-009
6. P. Andresen, G. Meijer, H. Schluter, H. Voges, A. Koch, W. Hentschel, W. Oppermann, and E. Rothe, "Fluorescence Imaging Inside an Internal Combustion Engine using Tunable Excimer Lasers", Applied Optics Vol. 29, pp 2392~2404 (1990)
7. B. E. Battles, J. M. Seitsmann, and R. K. Hanson, "Quantitative Planar Laser-induced Fluorescence Imaging of Radical Species in High Pressure Flames", AIAA Paper 94-0229, (1994)
8. C. Schulz, V. Sick, and J. Wolfrum, "Quantitative 2D Single-shot Imaging of NO Concentrations and Temperatures in a Transparent SI Engine", Twenty-Sixth Symposium on Combustion, pp 2597~2604, (1996)
9. 임인건, 이기철, 김용서, 남기중, 이성풍 "평면 LIF법을 이용한 충류 혼합화염 내 NO 농도 분포의 정량적 측정" 한국자동차공학회 춘계학술대회논문집 Vol.1, pp 172 ~179 (1998)