

영상처리에 의한 화염 발광 라디칼의 가시화

김경찬 · 김영민 · 정주영

계명대학교 물리학과

김태권

계명대학교 자동차공학과

(1998년 4월 11일 받음, 1998년 7월 8일 수정본 받음)

분젠버너에서 당량비에 따른 연료부족, 적정, 과잉의 경우로 예혼합된 프로판-공기 화염에서 발생된 C_2 , CH, OH 라디칼의 농도형태 측정을 영상처리법을 이용하여 가시화하였다. 영상처리 시스템에서 협대역 통과필터, 영상증폭장치, CCD 및 PC를 사용하여 라디칼의 발광 파장대의 영상을 처리하였다. 영상처리 시스템을 통하여 화염에서 라디칼의 반응영역을 관찰하고, 라디칼의 농도분포를 예측할 수 있었다. 반응영역에서 각각의 라디칼의 공간적 분포는 C_mH_n 계열 화염의 반응 메카니즘을 이해할 수 있는 충분한 정보를 제공하였다. 이 정보로부터 C_2 라디칼의 형광은 반응영역 앞부분에 먼저 나타나며 CH와 OH 라디칼의 형광은 화염의 하류부분에 분포함을 알 수 있었다.

I. 서 론

라디칼의 특징은 안정된 분자에 전자 하나가 결합되어 있으며, 결합된 전자가 분리되는 순간에 라디칼은 매우 강렬히 반응하고 생성과 소멸이 매우 빠르게 이루어지며 안정된 화학종으로 전이한다. 이러한 특징 때문에 라디칼은 화염과 플라즈마의 위치 및 분포 측정과 구조해석에 널리 이용되고 있다.^[1] 화염에서 라디칼 농도분포 측정은 화염대의 위치 및 구조파악의 중요한 변수가 되므로, 특정화염에 대한 연소과정을 이해할 수 있다. 지금까지 일반적으로 화학종의 농도를 측정할 때 안정된 화학종만을 측정할 수 있는 가스 크로마토그래프(gas chromatograph: GC)를 사용하였다. 그러나 화염과 같이 불안정한 연소장의 경우 매우 비정상적인 상태를 유지하므로, 연소장을 측정할 때는 연소장에 전혀 외란을 주지 않으며 높은 시·공간 분해능으로 측정하여야 한다.^[2] 최근에는 라디칼의 농도분포를 측정할 때 시·공간 분해능 향상을 위하여 레이저를 이용한 비접촉 측정법을 사용하는데, 현재 이러한 방법으로 LIF(laser induced fluorescence),^[3,4] PLIF(planar laser induced fluorescence)^[5,6] 등의 주사방식이 가장 널리 사용되고 있다. 그러나 이들 방법은 시·공간적으로 매우 불안정한 라디칼을 측정대상 전체에 대해 동시에 측정하기 어렵다는 한계를 가지고 있으며, 동시에 장치가 매우 복잡하고 고가인 단점도 갖고 있다. 따라서 본 연구에서는 열에너지에 의한 라디칼의 자발형광을 이용하여 연소장 전체를 동시에 측정하고자 한다.

본 실험에서 연료로 이용하는 C_mH_n 의 연소장에서 주 측정대상 중 화학반응의 중간생성물인 C_2 와 CH 및 OH 등의 라디칼은 주로 반응영역의 주변에 존재하므로 이들의 분포는 화염대의 위치와 구조 파악에 중요한 변수가 된다.^[7] 따라서 기존의 측정방법들을 대신하여 연소장내의 화학반응에 물리·

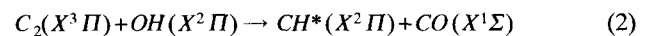
화학적 영향을 끼치지 않고, 높은 공간 분해능으로 측정하고자 한다. 본 연구에서 구축한 영상처리 장치를 통하여 화염대에서 발광하는 C_2 와 CH 및 OH 라디칼의 시·공간적 분포와 공간적 세기 등을 기존의 농도측정 결과와 반응과정에 따른 이론과 비교하였다.

II. 이 론

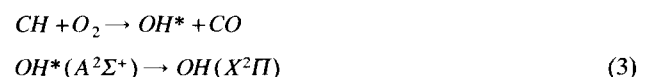
C_mH_n 계열 연료의 연소과정에서 발생하는 중간생성물인 라디칼 중에, C_2 와 CH 라디칼은 주로 화염의 반응영역에 국부적으로 존재하고 OH 라디칼은 라디칼 자체의 형광수명이 상대적으로 길며 고온영역에 널리 분포하므로 이러한 라디칼 등의 시·공간적 농도분포를 측정하여 분석하면 화염에서 반응대의 위치와 고온영역을 알 수 있다.^[8] C_mH_n 화염에서 C_2 는 비열이 $\Delta H = 200.224$ kcal/mole 이므로 연소과정에서 고려해야 할 주요한 발광분자이다. 이때의 발광파장은 516.5 nm이다. C_2 가 만들어지는 반응은 다음과 같다.^[7]



식 (1)에서 생성된 C_2 분자는 다음과 같이 OH와 반응한다.

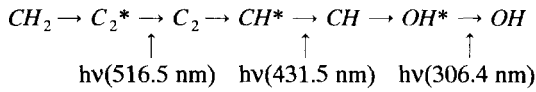


식 (2)에서 CH^* 는 $A^2\Delta = 2.88$ eV의 에너지 준위 값을 가지므로 $CH^*(A^2\Delta)$ 가 되어 431.5 nm 파장의 형광을 발생시킨다. 이렇게 생성된 CH 분자는 아래 식과 같이 O_2 와 반응한다.



OH 라디칼이 $A^2\Sigma^+$ 의 에너지 준위에서 안정된 $X^2\Pi$ 의 에너

지 준위를 갖는 OH 분자로 전이될 때 발광파장 λ 는 306.4 nm이다. 이들 (1), (2), (3) 식의 관계를 다음과 같은 화학반응 단계로 간단하게 표현할 수 있다.



이 단계로부터 CH 라디칼의 형광은 C₂ 라디칼의 형광보다, OH 라디칼의 형광은 CH 라디칼의 형광보다 시간적으로 뒤에 발생한다고 볼 수 있다. 또한 위의 발광과정 중에서 일정한 단일 파장만 선택하여 공간적으로 추적하면 해당 라디칼의 농도분포를 측정할 수 있다.

III. 실험장치 구성 및 방법

3.1. 영상처리 시스템

안정된 분쇄화염에서 발광되는 C₂와 CH 및 OH 라디칼의 분포를 계측하기 위해 그림 1과 같이 실험장치를 구성하였다. 사용한 버너는 크기가 50.6×142.6 mm², 노즐의 직경이 4.1 mm 버너를 사용하였고, 알곤가스로 화염을 안정시키는 보염기가 부착되었다. 내부구조는 honey-comb 구조와 glass bead 및 wire mesh로 구성된 2층의 보염장치와 노즐로 구성되었다. 연료와 산화제를 버너 외부에서 예혼합시켜 노즐로 주입하였다. 입력 광학계의 구성은 검출하고자하는 라디칼의 발광파장인 516.5 nm(C₂^{*})와 431.5 nm(CH^{*}) 및 306.4 nm(OH^{*})의 형광신호만을 통과시키기 위하여, 발광파장에 맞추어 제작되고 대역폭이 각각 1.2 nm(Andove사, 010FC10), 1.6 nm(Andove사, 015FC08), 16 nm(Andove사, ANDV3141)이고, 직경 1 inch인 협대역 통과 간섭필터를 사용하였다. 자외선 영역까지 통과 가능한 Nikon사의 UV-Nikkor 렌즈를 사용하여 입력 광학계를 구성하였다. 사용한 렌즈의 배율, 측정 거리, CCD 셀의 크기 등에 따라 화염의 농도분포를 최대 120.4×31.2 mm²

표 1. 당량비에 따른 화염의 종류

당량비	공기량	연료량
연료부족 $\phi = 0.8$		29 cc/min
연료적정 $\phi = 1.1$	840 cc/min	40 cc/min
연료과잉 $\phi = 2.2$		80 cc/min

범위에서 계측 가능하다. 또한 CCD 사진기의 전자셔터의 노출시간을 최소 6 ns 까지 설정할 수 있으므로 화염의 전파속도에 관한 데이터 획득도 가능하다.

협대역 통과필터를 거친 형광신호를 광음극에 입사시킨다. 입사된 광자는 광 전자로 방출되고, 광 전자는 MCP(micro channel plate)를 통하여 적절한 증폭율로 증폭된 후 인광판에 입력되어진다. 입력된 광 전자는 화염의 영상신호에 일치하는 증폭된 광자로 변환된다. 변환된 광자를 CCD로 검출하여 2차원의 라디칼 분포영상을 포착한다. 포착된 라디칼의 시·공간적 분포는 A/D 변환과정을 거쳐 PC에 입력된다. 이러한 영상처리 과정을 통해 입력받은 화염의 영상으로부터 C₂와 CH 그리고 OH 라디칼의 분포와 세기를 가시화 한다.

3.2. 영상신호의 처리

각각의 CCD pixel에서 출력된 전하 값에 대한 아날로그 영상신호를 디지털 신호로 변환하였다. 이 과정에서 각각의 pixel에 대한 전하 값은 16 bit의 A/D 변환을 하며, 영상처리 속도를 150 kHz로 설정하여 CCD 출력을 실시간으로 이루어지게 하였다. 변환된 영상신호가 모니터로 표현되기 앞서서 디지털화된 영상신호는 전용 고속메모리가 내장된 ISA 버퍼 보드에 잠시 저장되었다가 컴퓨터 기억 장소에 전송된다. 본 영상처리 시스템에서는 움직이는 유동장인 화염의 영상신호를 누산하여 평균 값을 구하려는 의도에서 accumulator 메모리를 사용하여 최대 32 bit/pixel의 용량으로 각각의 pixel에

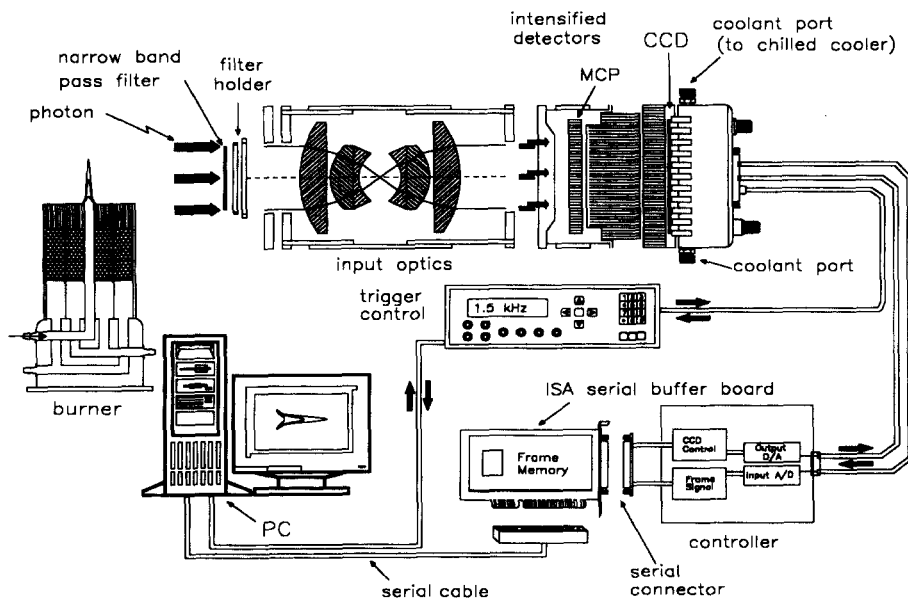


그림 1. 실험장치의 배치도.

대한 영상신호를 누산하였다. 처리된 영상신호는 화염에서 라디칼의 농도분포를 가시화하기 위하여 소프트웨어적으로 화소간 연산, 데이터 변환, 필터링, 회전을 통한 화염영상의 좌표변환 등의 다양한 영상처리 과정을 통하여 라디칼의 농도분포를 가시화 하였다.

IV. 결과 및 검토

4.1. 화염의 종류

연료로 사용한 프로판(C_3H_8) 가스의 조성은 체적분율에 따라 프로판이 76.6%, 에탄(C_2H_6)이 17.0% 그리고 부탄(C_4H_{10})이 6.3%로 이루어졌다.^[8] 당량비에 따라 화염의 종류를 표 1과 같이 정리하였다.

화염이 안정상태에서 연소할 수 있는 연료의 최대 값을 통하여 연료과잉의 당량비를 정하였다. 당량비 1일 경우가 이론적인 완전 연소조건이지만, 일반적인 연소환경에서 공기가 표준상태에 있지 않고 환경 차에 의하여 연료와 공기 중 산소의 체적분율이 일정하지 않은 이유로 화염의 전파속도가 최대인 당량비 1.1을 연료적정인 화염으로 하였다.

4.2. 중간생성물의 영상

당량비에 따른 각 라디칼의 농도분포를 상대적으로 서로 비교하기 위하여 CCD와 MCP의 증폭이득 등 측정조건을 전 실험을 통하여 동일하게 설정하였다. 모든 측정화염에 대하

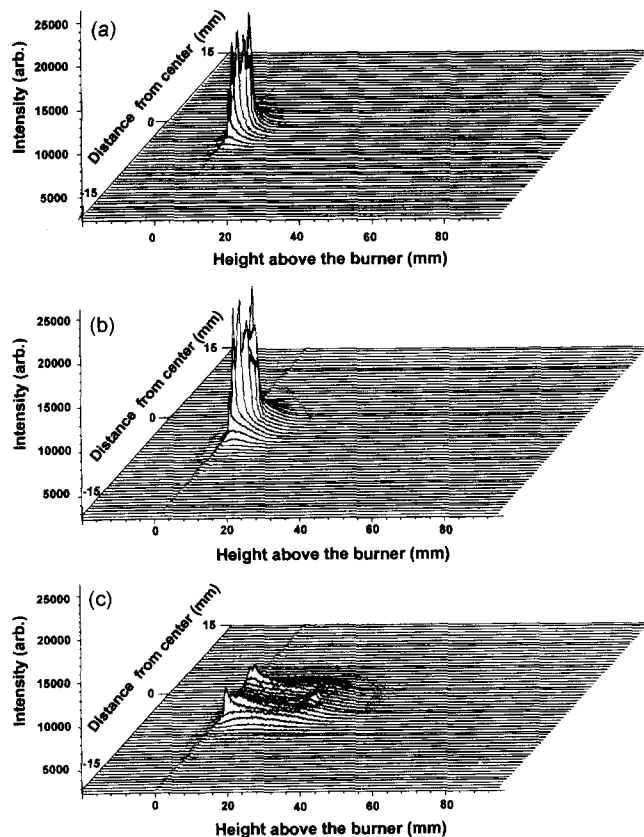


그림 2. 여러 당량비에서 화염의 공간적 분포 (a) 당량비 0.8, (b) 당량비 1.1, (c) 당량비 2.2.

여 각 120 μs 의 CCD 셔터 노출시간을 통해 얻은 영상을 accumulation 처리과정을 통해 10회 누산한 후 평균 값을 구 하였다. 여기서 120 μs 는 영상처리장치의 고정된 증폭이득에

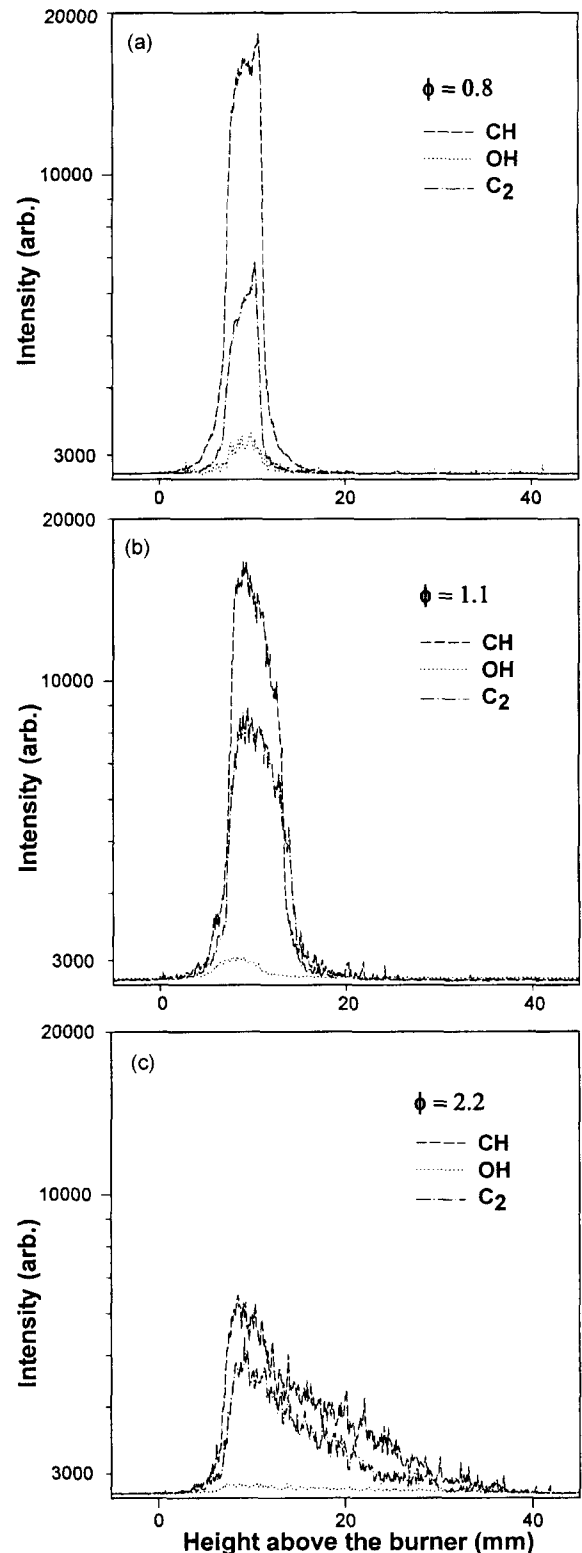


그림 3. 라디칼 종류에 따른 화염의 단면 (a) 당량비 0.8, (b) 당량비 1.1, (c) 당량비 2.2.

서 발광강도가 서로 크게 다른 각 라디칼의 영상을 적정 노출로 찍을 수 있도록 정한 노출시간이다.

그림 2-(a), 2-(b), 2-(c)는 각각 당량비 0.8, 1.1, 2.2일 때 화염의 분포에 따른 적분된 발광세기를 화소 구성이 1152×298인 CCD로 받아들여, 각 화소에 대응하는 발광세기를 WinSpec(Princeton Instruments사) V1.4 프로그램을 사용하여 3차원 공간적 분포로 가시화한 그림이다. X축에 화염의 높이를, Y축에 화염의 폭을, 그리고 Z축에 화소에 대한 화염의 발광 강도를 나타내었다. 연료량이 증가함에 따라 화염의 공간적 분포가 넓어짐을 알 수 있다. 사용한 영상증폭장치의 자체 잡음과 실험환경 등에 의한 잡음을 포함한 배경잡음을 측정하여 전체 측정 값에서 화소간 연산작업을 통하여 배경잡음을 제거하였다.

그림 3-(a)와 그림 3-(b) 및 그림 3-(c)는 당량비가 각각 0.8과 1.1 그리고 2.2인 화염의 중심에서 각 라디칼의 해당 협대역 필터를 통해 얻은 화염의 단면도이며, 화염의 높이에 따른 C₂와 CH 및 OH 라디칼들의 농도 세기를 보여준다. 영상신호와 각 라디칼의 농도관계의 연관성을 고려할 때 신호강도는 라디칼의 농도의 상대적 측정으로 볼 수 있다. 그림 3-(a)의 경우, 그래프의 앞부분의 기울기는 라디칼의 생성을 나타내고 뒷부분의 기울기는 라디칼의 소멸을 나타내므로 모든 라디칼들의 상대적인 소멸시간이 생성시간에 비하여 짧음을 보였다.

OH 라디칼은 매우 넓은지역에서 광범위하게 반응하여 나타나며 화염의 고온영역에 주로 분포한다는 특성을 잘 나타내고 있다.¹⁷⁾ 반면 CH와 C₂ 라디칼은 OH 라디칼에 비하여 매우 강한 세기를 가지고 예혼합된 연료와 산화제가 방출되어 반응하기 시작하는 노즐의 바로 윗부분에 집중적으로 분포한다. 3-(b)에서 라디칼들의 생성시간이 당량비 0.8인 화염과 비교할 때 비교적 빠른 반면에 소멸시간은 상대적으로 늦다. 이러한 상대적 시간차이 특징은 3-(c)의 당량비 2.2인 화염에서 더욱 두드러진다. 즉 연료의 양이 증가할수록 라디칼의 소멸시간이 생성시간에 비하여 길어지기 때문이다. 이것은 연료와 산화제의 반응 영역이 연료량의 증가에 따라서 널리 분포함을 보여준다. 또한 연료량의 증가에 따라 전체 라디칼의 발광세기가 약해지며 특히 CH 라디칼의 세기가 약해진다.

그림 4-(a)와 그림 4-(b) 및 그림 4-(c)는 연료량에 따른 화염 중심에서 높이에 따른 C₂와 CH와 OH 라디칼의 농도를 나타낸 것이다. 모든 라디칼들은 연료량의 증가에 따라 반응시간이 길어지면서 반응영역 역시 넓어진다. 화염 중심에서 라디칼 분포의 단면은 동일한 라디칼이라도 연료량 증가에 따른 화염에 따라 라디칼의 발광세기가 약해진다. 또한 화염에 대한 공간적 분포를 볼 때 C₂와 CH 라디칼은 연소가 시작되는 버너 바로 윗부분에서 집중적으로 발생하고 소멸된다. 반면에 모든 화염에서 OH 라디칼은 약한 세기를 가지고 넓은영역에서 발생된다. 그림 4-(b)에서 당량비 0.8과 1.1일 경우 화염 중심에서는 CH 라디칼 강도가 서로 비슷하다. 즉 비교적 당량비 차이가 적은 화염 중심에서 CH 라디칼의 발광세기는 오히려 연료량에 비하여 산화제량이 많은 당량비 0.8의 화염에서 강도가 높다. 이는 CH 라디칼은 산화제량이 많을수록 강

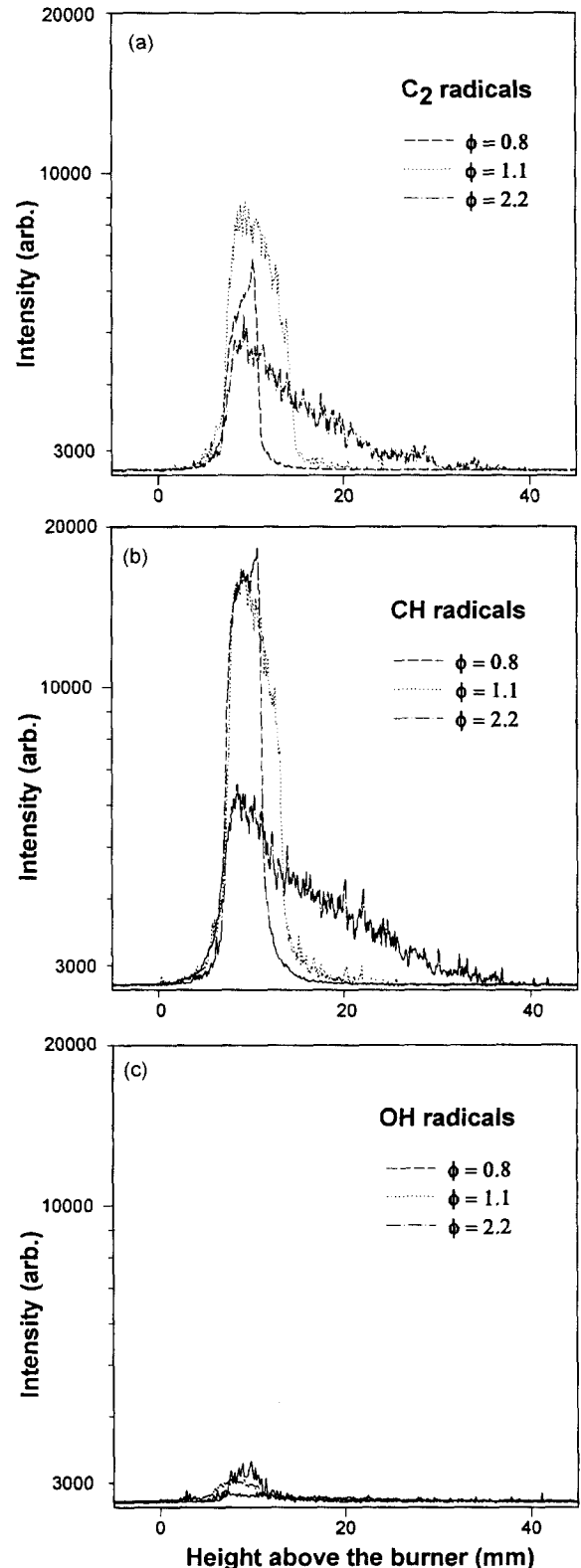


그림 4. 당량비에 따른 라디칼 영상의 단면 (a) C₂ 라디칼 (b) CH 라디칼, (c) OH 라디칼.

도가 높아짐을 의미한다. 화염의 연소 초기단계에서 라디칼이 발생하지 않는 이유는 연료 및 산소의 방출압이 강하여 연소 조건이 이루어지지 않았기 때문이다.

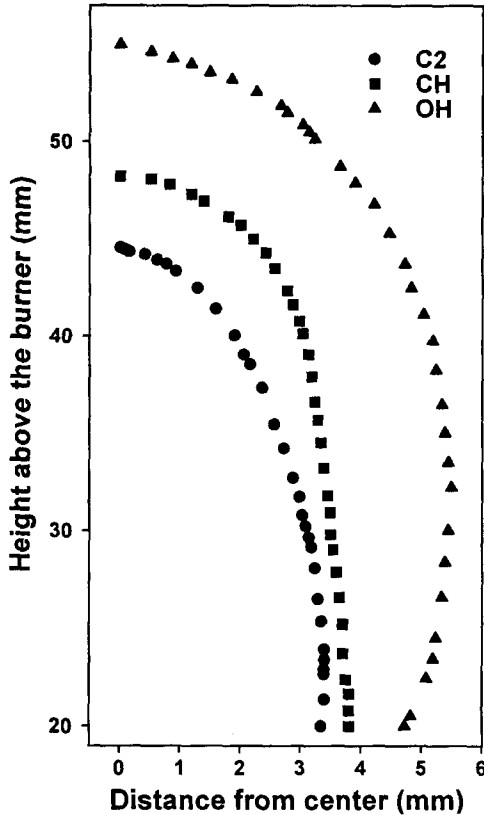


그림 5. 화염에서 라디칼의 발생소멸 영역.

그림 5는 버너 위에 생성된 C₂, CH 및 OH 라디칼이 발생 영역에서 소멸영역으로 급격히 변해가는 경계를 추출하여 보인 그림이다. 화학반응 단계에서 라디칼의 분포를 통해 볼 때 거리의 증가방향인 연소 반응물의 진행방향이므로 C₂ 라디칼이 소멸한 이후에도 CH 라디칼이 존재하여 있고, CH 라디칼이 소멸한 이후에도 OH 라디칼이 존재하여 있음을 볼 때 C₂, CH, OH 라디칼의 순서로 라디칼이 분포함을 알 수 있다. 이것은 반응단계에 있어서 C₂ 라디칼의 반응으로 CH 라디칼이 생성되고 또 다시 CH 라디칼의 반응으로 OH 라디칼이 시간적 차이를 두고 발생하기 때문이다. 또한 steady state의 화염을 고려할 때 신호의 위치는 라디칼들의 존재 시각과 상대적 연관이 있음을 알 수 있다. 이러한 순차적인 반응단계는 이론에서의 라디칼 생성과정과 일치하며, Itoh의 결과와 잘 일치한다.^[9]

V. 결 론

본 영상처리 시스템에서의 공간 분해능은 사용한 입력 광학계의 구성에 따라 증가 또는 감소될 수 있으나, 농도를 측정할 때 평균 0.1 mm×0.1 mm 수준의 공간 분해능을 유지하여 화염 라디칼의 공간 전체에 대한 정보를 동시에 얻을 수 있었다. 이와 같은 공간 분해능을 가지고 특정 영역에서 발생하는 화염의 연소과정에 대한 직접적인 가시화 결과를 얻었다.

모든 화염에서 라디칼들의 분포는 OH 라디칼의 경우 매우 넓은 지역에서 광범위하게 반응하여 나타났으며, CH와 C₂ 라디칼은 OH 라디칼에 비하여 매우 강한 세기를 가지고 화염의 앞부분에 집중적으로 분포함을 보였다. 이러한 라디칼들의 공간적 분포를 통하여 화염의 반응영역에서 C₂와 CH 및 OH 라디칼 순으로 분포함과, 이것을 통하여 화염에서 라디칼들이 화학반응에 의한 이론적 생성과정과 일치함을 보였다.

라디칼의 농도분포 측정을 통하여 버너와 같은 특정 연소계에 대한 연소형태의 가시화 및 화염구조의 분석 등, 전반적인 연소상태 등을 측정할 수 있었다. 또한 고효율, 고부하, 저공해 연소기기 개발을 위한 기초 계측 기술로 활용할 수 있으며 고부하 완전연소의 최적노즐 설계를 위한 자료구축 등의 기대효과를 가질 수 있다. 더 나아가 본 연구 방법을 연소장 뿐만 아니라 ECR(electron cyclotron resonance)-CVD의 플라즈마 농도분포 측정^[10] 적용함으로써 기존의 Langmuir probe를 사용한 접촉식 농도분포 측정^[11] 대신하여 고온 플라즈마의 농도를 비접촉으로 측정할 수 있다.

감사의 글

본 연구는 1996년도 한국과학재단 지정 계명대학교 저공해 자동차부품기술개발센터의 지원에 의한 것입니다. 본 연구를 위해 도움을 주신 한국기계연구원 심성훈 선생님께 감사드립니다.

참고문헌

- [1] J. F. Griffiths and J. A. Barnard, *Flame and combustion*, (Blackie Academic & Professional, Glasgow 1995) pp. 108-112.
- [2] G. Kychakoff, R. D. Howe and Ronald K. Hanson, *Appl. Phys.* **23**, 5 (1984).
- [3] 김태권, 한국 자동차 공학회지, **3**, 24 (1995).
- [4] P. Andresen and W. Reckers, *Zeitschrift fur Phys. Chem.* **175**, 129 (1992).
- [5] D. Wolff and P. Andresen, *Ber Bunsenges, Zeitschrift fur Phys. Chem.* **97**, 1738 (1993).
- [6] 박승환, 제2회 광 계측기술 워크샵논문집, pp. 22-42 (1993).
- [7] Yukio Mizutani and Kazuyoshi Nakabe, *JSME. series II*, **32**, 455 (1989).
- [8] 이우진, “층류 화염에서의 중간생성물(C₂, CH, OH radicals)측정” 한국 과학기술원 석사 학위 논문 (1994).
- [9] Hirokazu Itoh and Yukio Hommo, *JSME. series II*, **52**, 3362 (1987).
- [10] K. T. Rie and J. Wohle, *Materials science and engineering*, **A**, **139**, 37 (1991).
- [11] A. Lunk and R. Basner, *Materials science and engineering*, **A**, **139**, 41 (1991).

Visualization of luminescent radicals in the flame by image processing

Kyung Chan Kim, Yong Min Kim and Ju Young Joung
Department of Physics, Keimyung University, Taegu 704-701, Korea

Tae Kwon Kim
Department of Automotive Engineering, Keimyung University, Taegu 704-701, Korea

(Received April 11, 1998, Revised manuscript received July 8, 1998)

The Measurement of concentration patterns for C_2 , CH and OH radicals in the premixed propane-air flame could be managed through an image processing technique. This technique was applied to the three kinds of flames on a bunsen burner-mixtures of fuel to be lean, optimum and excessive respectively. The image processing system was accomplished by treating single wavelength flame images around the each radical luminescence band, which was obtained by using a set of narrow band pass filters, an image intensifier, CCD and PC. It was possible to observe and predict the reaction zone and the concentration distribution of the radicals. Spatial distribution of each radicals in the reaction zone gave us enough informations to analyze the reaction mechanisms in C_mH_n combustion process. According to this informations, the image of C_2 radical exists at front zone, following the images of CH and OH radicals at downstream.