

< 논문 >

시분해 레이저 유도 백열법을 이용한 매연 입자 크기에 관한 수치적 연구

이종호* · 김정용* · 정동수** · 전충환† · 장영준***
(2005년 4월 28일 접수, 2005년 7월 26일 심사완료)

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

Jong Ho Lee, Jeong Yong Kim, Dong Soo Jeong, Chung Hwan Jeon and 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 obtain an appropriate calibration curve for determining primary particle size by comparing the gated signal ratio and double-exponential curve fitting methods. Not only the effects of laser fluence and gas temperature on the cooling behavior but also heat transfer mechanisms of heated soot particle have been investigated. The second-order exponential curve fitting showed better agreements with the LII signals than the gated signal ratio method which was based on the first-order exponential curve fit. And the temporal decay rate of the LII signal and primary particle size showed nearly linear relationship, which was little dependent on the laser fluence. And it also could be reconfirmed that vaporization was 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 [J/cm^2]
FWHM : 반치폭 [ns]

m_p : 매연 입자 질량 [kg]
 c_s : 매연 입자 비열 [$J/kg K$]
 ρ_s : 매연 입자 밀도 [kg/m^3]
 α_{abs} : 흡수 계수 [a.u.]
 $\Delta H_v(T)$: 증발 엔탈피 [J/mol]
 W_v : 증발 입자 물질량 [kg/mol]
 h : 열전달계수 [$W/m K$]
 T_∞ : 주위 온도 [K]
 K_n : Knudsen 수
 λ_{mfp} : 평균자유행로
 ρ_v : 증발 입자 밀도 [kg/m^3]
 U_v : Langmuir 증발율
 T^* : 매연 입자 증발 온도 [K]

† 책임저자, 회원, 부산대학교 기계공학부
E-mail : chjeon@pusan.ac.kr
TEL : (051)510-3051 FAX : (051)512-5236
* 회원, 부산대학교 대학원 기계공학과
** 회원, 한국기계연구원 엔진환경그룹
*** 회원, 부산대학교 기계공학부 기계기술연구소

- U : 내부 에너지 [J]
- m : 복소 반사 지수
- $\beta(m)$: 구형 입자의 프래즈넬 반사율
- I_L : 흡수된 레이저 세기 [W/cm^2]
- G : 형상 계수
- k_∞ : 주위의 열전도 계수 [$W/m K$]
- P^* : 증발에 대한 참고압력 [N/m^2]
- R_m : 일반 기체 상수

1. 서론

전 세계적으로 배기가스에 대한 규제가 강화되고 있으며, 유해 배기가스의 배출량을 줄이기 위한 연구가 활발히 진행되고 있다. 이들 중에서 자동차, 가스터빈 등에서 발생하는 매연은 환경오염의 주된 원인의 하나로 인식되고 있으며, 매연 생성의 전구물질인 다중 고리 방향족 화합물 및 매연의 배출은 들연변이 유발 요인, 암 발생 원인으로 작용하는 등 인체에 직·간접으로 영향을 미치고 있다. 자동차 산업의 경우, 지금까지는 Euro III나 Euro IV를 통하여 매연입자의 무게로써 총량규제를 해왔지만, 최근 연구결과에 따르면 인체에 영향을 미치는 것은 매연입자의 무게가 아니라 그 크기라고 보고하고 있다.⁽¹⁻³⁾ 자동차에서 주로 배출되는 매연 입자들은 지름 $0.1\mu m$ 이하로 '나노입자'라고도 불린다. 크기가 작은 만큼 배기가스 농도에서 차지하는 비중은 미미하지만 개수는 천문학적으로 많다. 예를 들어, 지름 $0.03\mu m$ 인 매연입자 100만개를 합해야 지름 $3\mu m$ 입자 하나와 무게가 같다. 따라서 현재의 배기가스 규제는 매연 입자 크기의 중요성을 과소평가할 우려가 크다. 유럽에서는 조만간 입자크기 규제가 시작될 전망이며, 일본에서는 연구가 활발하지만 국내에서는 이제 연구를 시작한 단계에 있다. 그러므로 매연입자의 크기를 측정할 수 있는 연구의 필요성이 대두되고 있다 하겠다.

광학적 성질이 알려진 모든 입자에 대해서 크기를 측정하는 것이 이론적으로 가능하다. 하지만, 본 논문에서는 화염 내 매연 입자 크기 측정에 논점을 국한시키기로 하겠다. 매연입자의 측정에는 직접 탐침법과 레이저 감쇠/산란법(Laser extinction/scattering method; LES), 레이저 유도 백열법(Laser induced incandescence; LII)등의 비접촉식 방법이 사용된다. 특히 LII 기법은 시·공간 분

해능이 우수하며, 실시간으로 매연의 체적분율과 입자크기 측정이 가능하다. 입자크기는 LII 신호 감쇠비에 의존한다고 알려져 있기 때문에,^(4,5) 시간의 경과에 따른 입자의 냉각거동을 조사하면 입자크기를 결정할 수 있다. 이를 시분해 레이저 유도 백열법(Time Resolved LII; TIRE-LII)라고 부른다. 이 기법은 레이저 조사로 적열된 작은 입자들의 열전달 메커니즘을 해석하는데 기초를 두고 있는데, 이를 Fig. 1에 개략적으로 나타내었다.

LII 기법을 이용한 연구는 1977년 Eckbreth⁽⁶⁾에 의해 처음 행해졌으며, 이후 Melton⁽⁴⁾과 Dasch⁽⁷⁾에 의해 이론적으로 확립되었다. Hefeldt⁽⁸⁾는 파장에 의존하는 물성치가 각각 다른 직경의 매연입자의 흡수 및 방출특성에 미치는 영향을 해석함으로써 Melton 이론을 확장하였다. Quay⁽⁹⁾ 등은 LII신호가 어떤 세기 이하에서는 레이저세기에 선형적이며, 그 값 이상에서는 포화되고 거의 일정한 "plateau" 영역을 나타냄을 보였으며, Ni⁽¹⁰⁾ 등은 2차원 LII 이미징 기법으로 확대하였다.

매연의 입자크기 측정 관점에서 선행연구들을 살펴보면, Santoro⁽¹¹⁾ 등은 광산란/감쇠법을 이용하여 동축 확산화염에서 매연입자의 입자크기 분포를 측정하였다. 이 연구를 통해 화염의 구조가 매연 성장(growth)과 산화(oxidation)가 지배적인 2개의 영역으로 나누어짐을 밝혔으며, 지금까지도 이 연구결과가 LII 신호 정량화에 많이 이용되어지고 있다. Vander Wal⁽¹²⁾ 등은 직접 탐침법(TEM; Transmission electron microscopy)을 이용하여 입자 크기를 직접 측정한 후, 이를 시간의 경과에 따른 LII 신호의 감쇠특성을 이용한 게이트 신호비(gated signal ratio) 방법과 이중 지수함수 근사(double-exponential curve fitting) 방법을 이용하여 여러 종류의 연료를 사용한 확산화염에서의 입자 크기 결정법을 제안하였다.

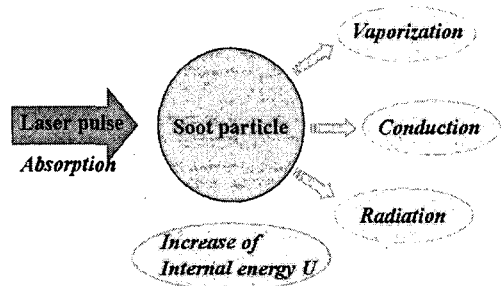


Fig. 1 Schematic representation of the power balance of a laser heated soot particle

독일의 Will⁽¹³⁻¹⁵⁾ 등은 매연 입자의 냉각특성이 입자크기 정보를 나타내고 있다는 사실에 근거하여, 레이저 조사 후 서로 다른 두 시점에서 LII 신호의 비(ratio)를 구함으로써 정량적인 입자크기 측정을 가능하게 한 TIRE-LII 기법을 최초로 제시하였다. 또한 시간 분해된 화염 이미지를 획득하여 화염 내 입자 크기 분포를 제시함으로써 2차원 기법으로 발전시켰다.

한편, 매연 입자 크기를 결정하기 위해서는 반드시 LII 신호의 모델링이 수반되어야 한다. 전술한 바와 같이, 수치적 모델의 연구는 기본적으로 1984년 Melton⁽⁴⁾이 제시한 식에 기초를 두고 있다. 이후 Melton 모델을 개선한 수정된 모델들이 많이 나왔는데, 이들 모델링의 우열에 대해서는 논란의 여지가 있다. 이는 근본적으로 모델링을 위한 매연의 광학적 성질에 대한 자료의 부족에 기인한 것으로서, 본 연구에서는 선행연구⁽¹⁵⁻¹⁸⁾에서 사용된 매연의 광학적 성질 값들을 참조하였다. 또한 이러한 모델링을 통해 입자 크기가 매연 입자 온도 및 냉각거동에 미치는 영향 및 지배적인 열전달 메커니즘을 살펴보았으며, 기존의 선행연구와 비교를 통하여 본 모델링의 신뢰성을 확인하였다. 끝으로 정량적인 2차원 입자크기 측정에 대한 이론적 토대를 마련하고자, LII 신호 전체를 직접 해석하여 입자크기를 결정하는 방법(full curve fitting)과 서로 다른 두 시각에서의 LII 신호 비를 이용하여 입자크기를 결정하는 방법(gated signal ratio)에 대해 비교, 고찰하였다. 이는 후자의 방법은 2차원 측정이 용이한 반면에, 전자는 거의 불가능하다는 측면에서 중요한 의미를 가진다 하겠다.

2. 수학적 모델

2.1 에너지 평형 방정식

LII의 모든 모델은 입자의 에너지 평형에 기초를 둔다. LII는 레이저 조사에 의해 입자가 가열되는 것은 흡수되는 향으로 표현되며, 입자의 냉각은 주로 증발과 주위로의 전도와 에너지의 흑체복사로서 이루어진다. Fig. 1은 에너지 평형을 개략적으로 나타낸 것이며, 이를 식으로 표현하면 다음과 같다.

$$\frac{dU}{dt} = \dot{Q}_{abs} - \dot{Q}_{vap} - \dot{Q}_{con} - \dot{Q}_{rad} \quad (2)$$

각 항들에 대해 간략히 살펴보면 다음과 같다.

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

$$\dot{Q}_{abs} = \alpha_{abs}(r, \lambda_0) I_L(t, x) \pi r(t)^2 \quad (4)$$

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

$$\dot{Q}_{vap} = - \frac{\Delta H_V(T)}{W_V} \frac{dm_p}{dt} \quad (5)$$

$$\dot{Q}_{con} = 4\pi r(t)^2 h \frac{(T - T_\infty)}{r(t)} \quad (6)$$

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

매연 입자는 레이저 에너지 조사에 의해 적열된다. \dot{Q}_{abs} 항은 적열면적과 여기과장에 따른 흡수계수 $\alpha_{abs}(r, \lambda_0)$ 로 표현되어지며, 가시화영역에서는 $\delta \approx 0.1 \mu\text{m}$, 자외선영역(200~300nm)에서는 δ 를 $0.01 \sim 0.02 \mu\text{m}$ 로 가정하였다.⁽⁴⁾

증발항 \dot{Q}_{vap} 는 질량의 변화에 따르며, W_V 는 물질량이다.⁽¹⁷⁾

전도항 \dot{Q}_{con} 은 입자의 면적과 주위 온도와의 차이, 열전달계수 h 에 의해 표현된다. 이는 G 와 Kn 에 의존하는데, Snelling⁽¹⁶⁾ 등이 계산한 열전달계수를 사용하였다. k_∞ 와 λ_{mfp} 는 Sutherland 근사⁽¹⁹⁾에 의해 표현되어진다.

복사항을 나타내는 식 (7)에서 $q_{rad}(T, r)$ 는 입자의 방사계수는 흡수계수와 같다는 가정 하에서, 방사과장의 적분에 의해 계산되어진다.⁽⁴⁾

식 (3)-(7)을 정리하면, 다음과 같이 표현된다.⁽¹⁸⁾

$$\frac{dT}{dt} = - \frac{3q_{rad}(T, r)}{r \rho_s c_s} - \frac{3(T - T_\infty)k_\infty}{[1 + G\lambda_{mfp}/2r(t)]r(t)^2 \rho_s c_s} + \frac{3\alpha_{abs}(r, \lambda_0) I_L(t, x)}{4r(t)\rho_s c_s} + \frac{3\Delta H_V(T)r(t)}{W_V r(t)c_s} \quad (8)$$

2.2 질량 평형 방정식

질량 평형 방정식은 다음과 같다.⁽¹⁸⁾

$$-\rho_s \frac{dr}{dt} = \rho_V U_V \quad (9)$$

ρ_V 는 증기화된 매연 입자의 밀도, U_V 는 Langmuir 증발율이다.⁽⁶⁾ U_V 는 온도와 물질량의 함수이며, 이때 매연과 증기의 온도는 같다고 가정한다. 이상기체방정식에 의해서 ρ_V 와, Clausius-Clapeyron 방정식에 의해서 증기압력이 계산되어진다.

위 식들을 조합하여, 시간에 따른 입자크기의 변화를 하나의 식으로 표현하면 다음과 같다.⁽¹⁸⁾

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{p^*}{\rho_s} \sqrt{\frac{W_V}{2R_m T}} \exp\left[\frac{\Delta H_V(T)(T-T^*)}{R_m T T^*}\right] \quad (10)$$

2.3 LII 신호

식 (2), (9)의 에너지 및 질량 방정식을 통해서, 식 (8), (10)의 두 개의 비선형방정식을 유도하였다. 두 개의 비선형방정식을 풀게 되면 시간에 따른 매연입자의 온도와 반지름을 구할 수 있다. LII 신호의 계산은 직접적으로 입자의 온도와 반지름을 통하여 구할 수 있으며, 그 식은 Will⁽¹⁴⁾ 등에 의해 아래와 같이 제안되었다.

$$S_{LII} \propto r^2 \int R(\lambda) \alpha_{abs}(r, \lambda) \frac{c_1 n_\infty^2}{\lambda^5 (e^{c_2/\lambda T} - 1)} d\lambda \quad (11)$$

$R(\lambda)$ 는 광학 시스템의 전송과 검출기의 스펙트럼의 민감도에 대한 복합적인 함수이다. 본 논문에서는 단일 검출파장을 사용하였기에, 상대적으로 나타내게 되는 S_{LII} 를 구하는 식 (11)에 있어 $R(\lambda)$ 는 생략 가능하다.⁽¹⁷⁾

3. 결과 및 고찰

3.1 입자 크기가 LII 신호에 미치는 영향

일정한 세기의 에너지를 조사하였을 때, 입자 반경(r_0)에 따른 매연 입자의 온도특성과 냉각거동을 살펴보았다. 반치폭(Full Width at Half Maximum; FWHM) 10 ns, 가우시안 분포, 레이저

세기 0.15 J/cm^2 , $T_0 = 1800\text{K}$ 조건에서, r_0 을 $20 \sim 60\text{nm}$ 까지 변화시켰을 때의 입자온도와 LII 신호 수치해석 결과를 Fig. 2에 나타내었다.

Fig. 2(a)는 시간에 따른 입자크기별 온도변화를 나타내는데, 그림에서 보듯 조사된 레이저 강도는 모든 반경조건에서 입자를 증발온도(3915K)보다 높게 가열시키는 것과 입자크기에 상관없이 최고 온도는 제한되는 것을 발견할 수 있다. 이는 크기가 커지게 되면 $\alpha_{abs}(r, \lambda_0)$ 가 일정한 값을 가지게 되므로,⁽⁴⁾ 입자 크기의 변화에 따라서 최고온도의 변화가 그리 크지 않음을 의미한다.

또한, 입자 크기가 증가함에 따라 같은 시각에서의 온도가 더 높음을 발견할 수 있다. 이는 입자 크기에 따른 열을 간직할 수 있는 능력(heat capacity)의 차이에 기인한 결과로써, 입자가 클수록 열을 간직할 수 있는 능력이 크기 때문에 천천히 냉각되게 된다.

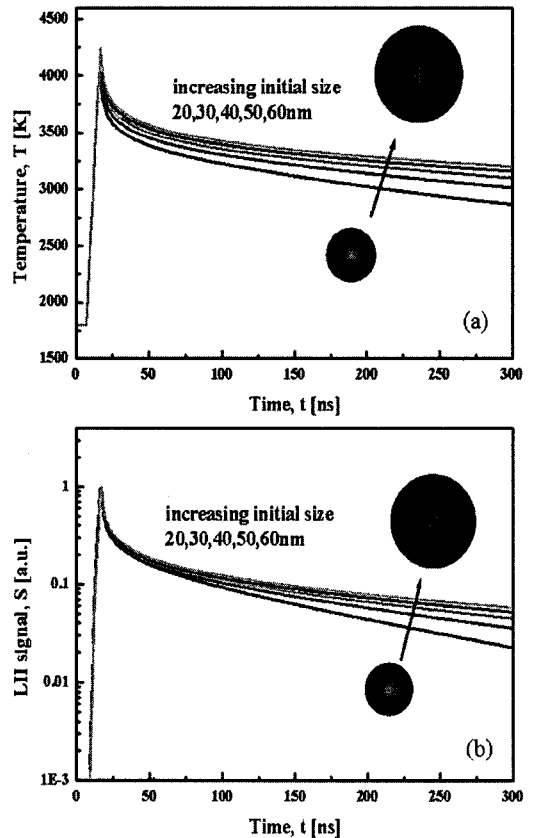


Fig. 2 Effect of primary particle size on (a) soot temperature characteristics and (b) cooling behavior of LII signal

달리말하자면, 입자의 직경이 클수록 입자의 표면적-부피 비(surface to volume ratio)가 작기 때문에 감쇠기울기가 작아진다고 하겠다.

Fig. 2(b)에 나타난 시간의 경과에 따른 LII 신호 또한 큰 입자에서의 신호의 감쇠 기울기의 절대값이 작아지게 되는 것을 확인할 수 있었다. 한편, 레이저 조사 후 대략 100ns 이후에는 신호의 감쇠 기울기, $-d\{\ln S(t)\}/dt$ 가 거의 일정한 값을 발견할 수 있다. 기울기가 직선인지에 대한 여부는 2차원 입자측정의 관점에서 중요한 의미를 지닌다. 만약 직선이라면 LII 신호는 시간에 대한 지수함수의 형태로 표현이 가능하고, $t_1=100$ ns라 할 때 임의의 시점(t_2)에서 LII 이미지를 획득함으로써 2차원 입자크기 분포를 얻을 수 있다. 반면에, 기울기가 완전한 직선이 아닌 경우에는 t_2 의 선정에 따라 기울기 값이 달라지므로 전체 LII 신호의 냉각거동을 해석하여야 하고 2차원 측정은 거의 불가능하다고 할 수 있다. 이에 대한 자세한 고찰은 3.3절 이하에서 하기로 한다.

3.2 열전달 메커니즘

Fig. 3은 일정한 레이저 강도 조건하에서 입자 크기에 따른 열전달 메커니즘을 비교한 결과를 나타낸 것이다. 시간에 따른 입자의 열손실 메커니즘, 즉 증발, 전도, 복사 열전달이 입자에 미치는 영향을 살펴본 것으로, Fig. 3(a), (b)를 비교해보면, 일정한 레이저 세기에서 입자크기가 클수록 증발효과는 다른 열전달 메커니즘에 비해 상대적으로 오래 지속된다는 것을 알 수 있다. 또한, 레이저 조사 후 100ns까지는 증발효과가 가장 큰 반면에, 100ns 이후에는 전도 메커니즘이 지배적이라는 것을 발견할 수 있다. 참고로, 본 연구에서의 시간에 따른 LII 신호는 1차 지수함수(first order exponential curve) 형태로는 잘 근사되지 않은 반면, 2차 지수함수에 아주 잘 근사함을 발견할 수 있었다. 이는 레이저 조사 후 100 ns 이후시간 영역에서의 증발, 복사의 영향, 특히 증발의 영향에 기인한 결과로 사료된다. 다시 말하자면, 전도 메커니즘이 지배적인 시간 영역에서도 증발효과를 무시할 수는 없는 것으로 판단된다.

3.3 게이트 신호 비

반치폭 10ns, 레이저 세기 $0.1J/cm^2$, $T_0=1800K$ 조건에서 $t_1=100ns$ 로 고정한 후, t_2 를 400~800ns로 200ns 간격으로 변화시켰을 때의 게이트 폭에 따른 LII 신호비 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 이를 통해 몇 가지 사실을 확인할 수 있다. 첫째, t_2 가 일정한 경우에 입자의 크기가 커질수록 신호의 비가 커진다. 이는 $S(t_1)$ 가 일정한 경우 입자의 크기가 커질수록 $S(t_2)$ 가 크다는 것을 의미한다. 즉, 입자 크기가 클수록 신호의 감쇠 기울기의 절대값이 작아짐을 다시금 확인할 수 있다. 둘째, 크기가 같은 입자에 있어서 $t_2=400ns$ 로 잡는 것이 $t_2=600, 800ns$ 에 비해 $S(t_2)/S(t_1)$ 비가 큼을 확인할 수 있다. 따라서 Fig. 5에서 $S(t_2)/S(t_1)$ 값에 로 그를 취하여 구한 신호감쇠시간(τ) 결과를 나타냄에 있어 그 오차를 줄이기 위해 충분히 큰 값을 가지는 400ns를 t_2 로 선정하였다. 또 다른 선정이유는, $t_2=400ns$ 로 설정한 선행연구 결과와 경향을 비교해 보기 위함이다. 셋째, 두 측정시점에서 신호를 취득하는 시간, 즉 게이트 폭을 넓혀 줌으로써, 실제 입자크기에 비해 약간 작은 값을 나타낼 수 있다는 것을 알 수 있다.

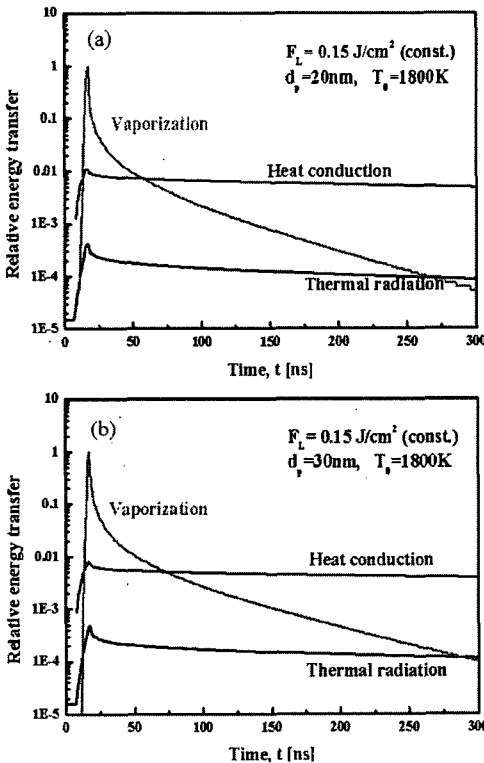


Fig. 3 Comparison of heat transfer mechanisms at different particle sizes; (a) $d_p=20nm$ (b) $d_p=30nm$

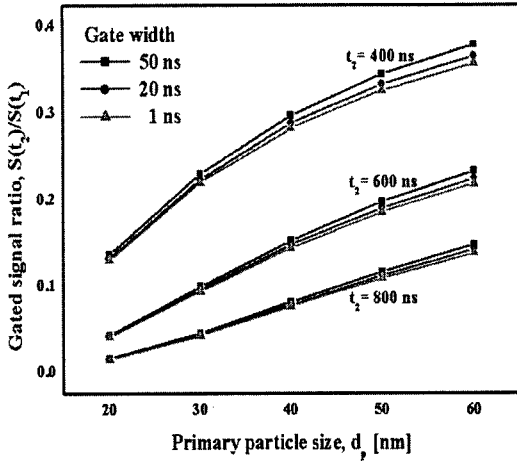


Fig. 4 Gated signal ratio of $S(t_2)/S(t_1)$ at two times for various choices of the second moment of observation t_2 ; the t_1 has been fixed at 100ns after laser pulse

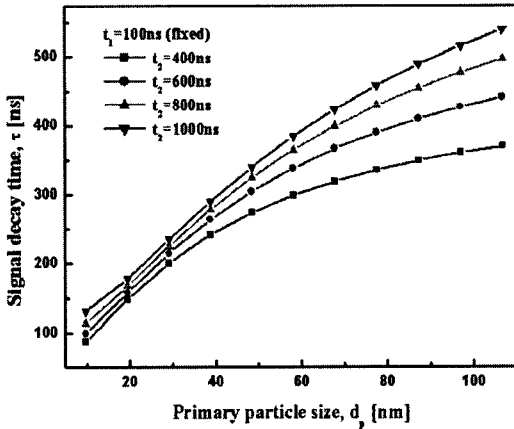


Fig. 5 Signal decay time obtained from the same condition in Fig. 4

이는 2차원 입자 크기 분포 측정의 경우, 게이트 폭을 일정 이상 열어 이미지를 취득해서는 실제 값과 다른 결과를 얻을 수 있다는 것을 의미한다.

Fig. 4와 동일한 조건에서 얻은 신호감소시간 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 이는 LII 신호가 아래 식 (12)처럼 표현이 가능하다는 가정 하에 얻은 것으로서, 신호감쇠시간이 입자 크기에 관한 정보를 제공해 줄 수 있다는 것을 보여준다.

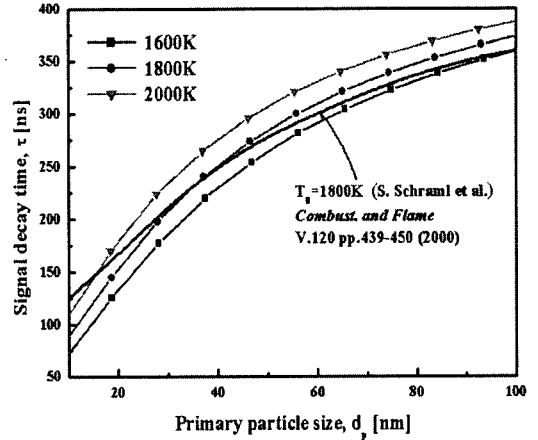


Fig. 6 Signal decay time as a function of primary particle size for three different gas temperatures

$$S(t) \propto \exp\left[-\frac{t}{\tau(r)}\right] \quad (12)$$

다만, 신호비와 입자크기 사이의 관계를 설정하기 위해서는 t_2 선정이 아주 중요하다는 것을 알 수 있다. 예를 들어, t_2 를 800ns, 1000ns와 같은 늦은 시점을 택한다면 신호 비는 입자크기에 더욱 민감해 질 것이며, 반대로 t_2 를 400ns 이전의 값을 택한 경우에는 전체 LII 신호의 감쇠 거동을 잘 나타내지 못할 수도 있을 것이다. 따라서 LII 신호의 지속시간 등을 고려하여 t_2 선정에 주의를 기울여야 할 것이다.

Fig. 6은 Fig. 4, 5와 동일한 조건하에서 $t_1=100$ ns, $t_2=400$ ns로 설정한 후, 가스온도(T_0)를 1600, 1800, 2000K로 변화시켰을 때의 입자 크기에 따른 신호감쇠시간을 나타낸 것이다. 아울러, 본 모델링에 대한 신뢰성을 살펴보기 위해 선행연구 결과⁽¹⁵⁾와 비교해 보았다.

비록 본 모델링 결과가 20nm 이하의 입자크기에 대해 약간 작은 값을 나타내긴 하지만, 전체적으로 거의 유사한 경향을 나타내었다. 또한, 가스온도(T_0)가 매연의 입자크기를 결정함에 있어 오차발생의 주요한 원인 중의 하나라는 것을 알 수 있다.

이러한 관점에서, 가스온도 변화가 입자크기에 미치는 영향뿐만 아니라 입자의 다른 광학적 성질이 미치는 영향에 대한 정량적인 분석이 필요하다 하겠다.

3.4 광학적 성질이 입자크기에 미치는 영향

본 연구에서 모델링을 수행함에 있어 사용되었던 매연 입자의 광학적 성질을 나타내는 상수 값들이 어떤 영향을 끼치는지에 대해 분석하였다. 기본상수 값들이 ±10% 변하였을 경우 입자크기를 계산함에 있어 생기는 오차를 Fig. 7에 나타내었다. 두 개의 막대그래프 중 왼쪽은 $d_p=20\text{nm}$, 오른쪽은 $d_p=40\text{nm}$ 에 대해 나타내었다.

예를 들어, 주위온도가 입자크기에 미치는 영향을 살펴보기로 하자. 다른 상수들을 기본 값으로 두고 실제 주위온도가 1800K보다 10% 높은 1980K에서 실험을 행한 경우에 있어, 1800K를 가정하여 입자 크기를 구했다면 실제 입자크기보다는 약 20%정도 크게 계산되어졌다는 것을 보여주고 있다. 증발 엔트로피의 변화에 따른 결과를 살펴보면, 작은 입자는 영향을 거의 안 받는 것에 비해 큰 입자는 상대적으로 영향을 많이 받는 것으로 확인되었다. 그 외 증발 온도, 밀도, 비열, 열 전달계수 등은 10% 변화에 대해 비슷한 10%의 오차를 나타냄을 알 수 있었다. 이처럼, Fig. 6에서 살펴본 바와 같이, 정확한 입자 크기를 계산함에 있어 주위온도의 영향이 가장 큰 것을 확인할 수 있었다. 달리 말하자면, TIRE-LII 기법을 이용한 입자크기 결정을 위해서는 국소 가스온도 정보가 필수적이라는 것을 보여주는 결과라 하겠다.

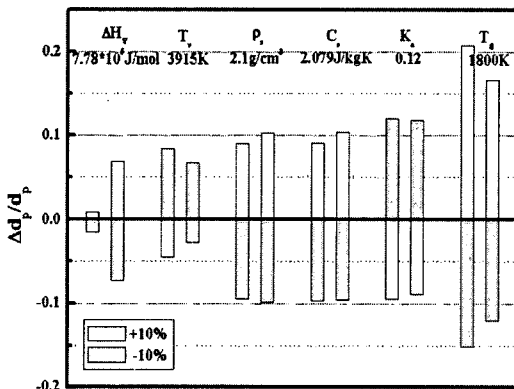


Fig. 7 Relative error or variation in the primary particle size determined for a +10% (open bars) or a -10% (filled bars) change in the underlying parameters. Examples are shown for a true diameter of 20nm (left) and 40nm (right)

3.5 이차 지수함수 근사

앞에서 살펴 본 게이트 신호 비 방법을 이용하여 매연입자 크기를 결정하는 교정곡선을 Fig. 6에 나타내었다. 이 방법은 비록 2차원 측정이 가능하다는 장점이 있긴 하지만, Fig. 5에서 보는 바와 같이, t_2 선정에 따라 각기 다른 교정곡선을 가질 뿐만 아니라 전체 시간에 걸친 LII 신호 변화 거동을 나타내지 못한다는 단점이 있었다. 이러한 관점에서 새로운 교정곡선의 필요성이 대두되고, 본 연구에서는 모델링 결과를 수학적 함수 형태로 표현하고자 하는 시도를 하게 되었다.

Fig. 8은 주위온도를 1980K로 가정하고, 입자크기 60nm, 레이저 세기 0.15J/cm^2 조건에서 LII 신호를 2차 지수함수에 근사한 결과를 나타낸 것이다. 그림에서 보듯, 전도 메커니즘이 지배적인 시간 영역 전체에 걸쳐 상관계수가 99.99% 이상으로 아주 잘 일치한다는 것을 발견할 수 있다. 이는 LII 신호가 1차 지수함수에 근거한 게이트 신호 비 방법보다는 2차 지수함수형태에 더 잘 일치한다는 것을 보여주는 결과라 하겠다.

이러한 관찰로부터 주위온도를 1980K, 레이저 세기 0.15J/cm^2 조건에서 입자크기를 변화시켜감에 따른 1차 감쇠율(τ_1), 2차 감쇠율(τ_2)의 변화 거동을 살펴보고, 이를 Fig. 9에 나타내었다.

Fig. 9에서 보는 바와 같이, 입자크기에 따른 1차 감쇠율(τ_1) 그래프는 비선형 형태로써, 입자크기 결정을 위한 교정곡선으로 사용하기에는 적당하지 않다는 것을 알 수 있다. 하지만, 2차 감쇠율(τ_2)은 입자크기와 거의 완벽한 선형관계를 나

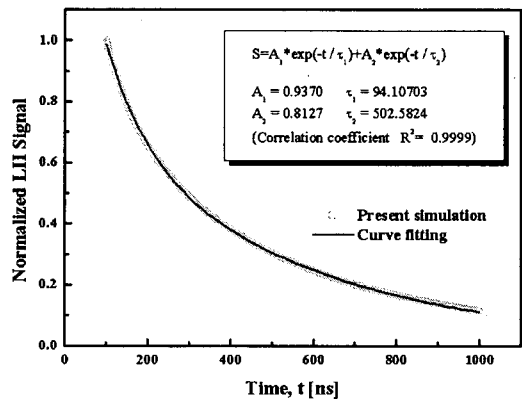


Fig. 8 Second-order exponential curve fit to the normalized LII signal obtained from modeling

타낸다는 것을 발견할 수 있다.

이는 2차 감쇠율(τ_2)이 전도 메커니즘이 지배적인 시간영역에서의 LII 신호를 아주 잘 나타내는 파라미터라는 것을 확인시켜 주는 결과라 하겠다. 물론, 1차 감쇠율(τ_1)과 2차 감쇠율(τ_2) 뿐만 아니라 두 지수함수에서의 계수(A_1, A_2)들의 물리적 의미와 상관관계에 대해서는 좀 더 고찰이 이루어져야 할 것으로 사료된다. 또한, 2차 감쇠율(τ_2)을 교정곡선으로 사용하기 위해서는 입자결정에 지배적인 영향을 미치는 파라미터(예를 들어, 주위온도, 레이저 세기 등)에 대한 변화를 살펴볼 필요가 있다.

Fig. 10은 주위온도 1620 ~ 1980K, 레이저 세기 0.1 ~ 0.2 J/cm²에서의 입자크기에 따른 2차 감쇠율(τ_2) 변화 결과를 나타낸 것이다.

Fig. 10(a)에서 보는 바와 같이, 모든 온도조건에서 선형관계를 가짐을 다시금 확인할 수 있다. 또한, 주위온도 1800K를 기준으로 10% 증가한 경우(1980 K)가 10% 감소한 경우(1620 K)에 비해 입자크기의 변화폭이 크다는 것을 알 수 있으며, 이러한 경향은 입자가 커질수록 현저해진다는 것을 발견할 수 있다. 이는 Fig. 7에서 살펴본 것과 일치하는 결과라 하겠다.

Fig. 10(b)로부터, 실험에서 주로 사용되는 레이저 세기범위(0.1 ~ 0.2 J/cm²)에서 선형관계를 가진다는 것과 아울러 2차 감쇠율(τ_2)은 레이저 세기에 거의 영향을 받지 않는다는 것을 발견할 수 있다. 이는 입자크기를 결정하기 위한 실험적 접근에 있어 레이저 세기를 선정하는 가이드를 제공해 주는 결과라 하겠다. 다만, 레이저 강도를 일정 크기 이상으로 선정하게 되면 증발 효과에 의한 입자크기 감소가 발생된다는 점을 유의하여야 한다. 예를 들어 설명하면, 레이저 세기 0.2 J/cm²의 경우, Fig. 10(b)의 가로축에 나타난 입자크기는 증발이 일어나기 전($t=0$)의 크기를 나타낸다. 한편, Fig. 10(b)에 나타난 결과들은 레이저 펄스 100ns 이후의 전도메커니즘이 지배적인 시간영역에서 획득한 결과이다. 따라서 이 시간 영역에서의 20~60nm에 해당하는 입자크기를 구해보면, 각각 17.9, 26.8, 35.8, 44.8, 53.8nm를 나타낸다. 그리고 이러한 입자크기의 감소를 고려하여 그래프를 다시 그리면, 증발이 일어나지 않은 레이저 세기 0.1 J/cm²의 경우와 완전히 일치한다는 것을 발견할 수 있었다. 이는 증발이 일어나지 않는 레이저 세기범위에서는 입자크기에 따른 2

차 감쇠율(τ_2)은 레이저 세기에 무관하다는 것을 알려주는 결과라 하겠다.

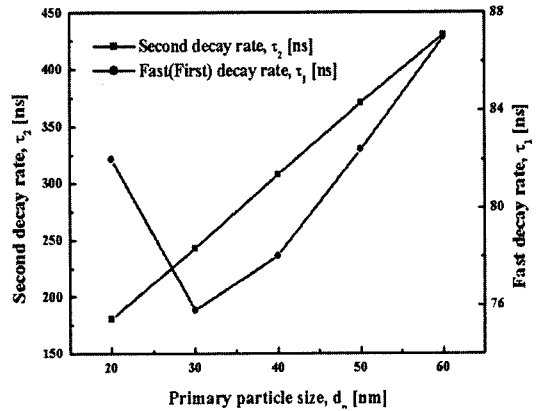


Fig. 9 Correlations between primary particle size and fast, second decay rate

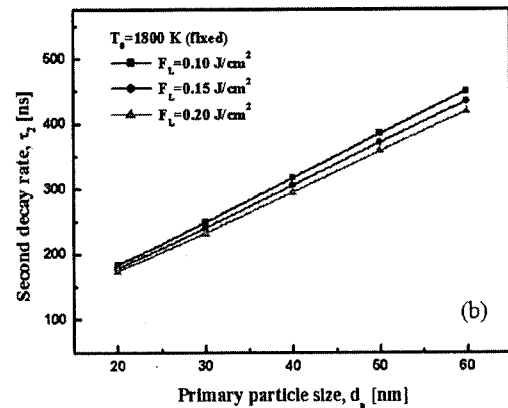
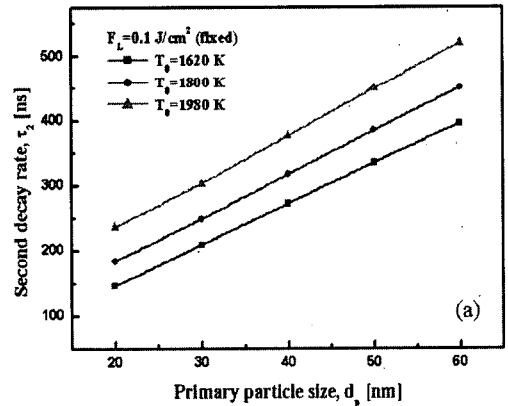


Fig. 10 Influences of (a) ambient gas temperature and (b) laser fluence on the relationship between primary particle size and second decay rate

4. 결론

TIRE-LII 기법을 이용한 매연 입자크기에 관한 수치적 연구로부터 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 질량 및 에너지 평형 방정식으로부터 매연 입자크기 결정에 필수적인 LII 신호 거동에 대한 모델링을 제시하였으며, 이를 통해 레이저 조사된 입자의 열손실 메커니즘을 규명하였다.

(2) 매연입자의 광학적 성질이 입자의 냉각거동에 미치는 영향에 대해 정량적인 자료를 제시하였다. 특히, 가스온도를 10% 높거나 낮게 가정하였을 경우 입자크기에 있어 20% 이상의 오차가 발생됨을 알 수 있었는데, 이는 매연 입자의 크기를 결정함에 있어 국소 가스온도 정보가 필수적이라는 것을 말해준다.

(3) 매연 입자의 전도 메커니즘이 지배적인 시간 영역에 있어, 입자의 두 시점에서의 신호 비만을 이용해서 입자의 크기를 결정하는 게이트 신호 비 방법과 전체 시간영역을 통해 크기를 구하는 2차 지수함수 근사방식을 비교, 분석함으로써 입자크기 결정을 위한 적절한 교정곡선을 제시하였다. 즉, 전자의 경우는 t_2 의 선정에 따라 교정곡선이 달라지고 게이트 폭에 따라 신호비가 변한 반면에, 후자의 경우는 일정 범위의 레이저 세기, 주위온도 조건에서 99.99%이상의 상관계수를 보이는 선형관계를 나타내었다. 이로부터 전도 메커니즘이 지배적인 시간영역에서도 증발, 복사 영향이 공존한다는 사실과 이러한 입자의 냉각거동을 잘 나타내기 위해서는 2차 지수함수 근사방식이 게이트 신호 비 방법에 비해 우수하다는 것을 알 수 있었다.

후 기

‘미래형 자동차 배기가스 제로화 기술개발’과제 및 부산대학교 신입교수연구지원비에 의해 수행되었으며 연구비 지원에 감사드립니다.

참고문헌

- (1) Lehre, T., Jungfleisch, B., Suntz, R. and Bockhorn, H., 2003, "Size Distributions of Nanoscaled Particles and Gas Temperatures from Time-resolved Laser-induced Incandescence Measurements," *Applied optics*, Vol. 42, No. 12, pp. 2021~2030.
- (2) Wahlin, P., Palmgren, F. and Dingenen, R. V., 2001, "Experimental Studies of Ultrafine Particles in Streets and the Relationship to Traffic," *Atmos. Environ.* Vol. 35, pp. 63~69.
- (3) Nikula, K. J., Finch, G. L., Westhouse, R. A., Seagrave, J. C. and Mauderly, J. L., 1999, "Progress in Understanding the Toxicity of Gasoline and Diesel Engine Exhaust Emissions," SAE 1999-01-2250.
- (4) Melton, L. A., 1984, "Soot Diagnostics Based on Laser Heating," *Applied Optics*, Vol. 23, No. 13, pp. 2201~2208.
- (5) Roth, P. and Filippov, A. V., 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.
- (6) Eckbreth, A. C., 1977, "Effects of Laser Modulated Particle Incandescence on Raman Scattering Diagnostics," *J. Appl. Phys.*, Vol. 48, pp. 4473~4479.
- (7) 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.
- (8) Hefedt, D. L., 1993, "Real-Time Soot Concentration Measurement Technique for Engine Exhaust Streams," SAE 930075.
- (9) Quey, B., Lee, T. W., Ni, T. and Santoro, R. J., 1994, "Spartially Resolved Measurements of Soot Volume Fraction Using LII," *Combust. and Flame*, Vol. 97, pp. 384~392.
- (10) Ni, T., Pinson, J. A., Gupta, S. and Santoro, R. J., 1995, "2-Dimensional Imaging of Soot Volume Fraction by the Use of LII," *Applied Optics*, Vol. 34, pp. 7073~7091.
- (11) Santoro, R. J., Semerjian, H. G. and Dobbins, R. A., 1983, "Soot Particle Measurements in Diffusion Flames," *Combust. and Flame*, Vol. 51, pp. 203~218.
- (12) Vander Wal, R. L., Ticich, T. M. and Stephens, A. B., 1999, "Can Soot Primary Particle Size be Determined Using Laser-Induced

- Incandescence?," *Combust. and Flame*, Vol. 1161, pp. 291~296.
- (13) Will, S., Schraml, S. and Leipertz, A., 1995, "Two-Dimensional Soot-Particle Sizing by Time-Resolved Laser-Induced Incandescence," *Optics Letter*, Vol. 20, pp. 2342~2344.
- (14) Will, S., Schraml, S. and Leipertz, A., 1996, "Comprehensive Two-Dimensional Soot Diagnostics Based on Laser-Induced Incandescence (LII)," *Proc. Combust. Instit.*, Vol. 26, pp. 2277~2284.
- (15) Will, S., Schraml, S., Bader, K. and Leipertz, A., 1998, "Performance Characteristics of Soot Primary Particle Size Measurements by Time-Resolved Laser-Induced Incandescence," *Applied Optics*, Vol. 37, pp. 5647~5658.
- (16) Snelling, D. R., Liu, F., Smallwood, G. J. and Gülder, Ö. L., 2000, "Evaluation of the Nanoscale Heat and Mass Transfer Model of LII : Prediction of the Excitation Intensity," NHTC 2000-12132, Proceeding of the NHTC 2000, 34th National Heat Transfer Conference, Pittsburgh, PA.
- (17) Bladh, H. and Bengtsson, P. -E., 2004, "Characteristics of Laser-induced Incandescence from Soot in Studies of a Time-dependent Heat- and Mass-transfer Model," *Applied Physics, B*, Vol. 78, pp. 241~248.
- (18) Schittkowski, T., Mewes, B. and Brüggemann, D., 2002, "Laser-induced Incandescence and Raman Measurements in Sooting Methane and Ethylene Flames," *Phys. Chem. Chem. Phys.*, Vol. 4, pp. 2063~2071.
- (19) White, F. M., 1991, *Viscous Fluid Flow*, McGraw Hill, NewYork.
- (20) Schraml, S., Dankers, S., Bader, K., Will, S. and Leipertz, A., 2000, "Soot Temperature Measurements and Implications for Time-Resolved Laser-Induced Incandescence," *Combust. and Flame*, Vol. 120, pp. 439~450.