

광대역 CARS를 이용한 불꽃 내부의 CO 농도 측정

한재원 · 박승남 · 이은성 · 이충희

한국표준과학연구원 온도연구실

정석호 · 강경태

서울대학교 기계공학과

최창렬 · 허용덕

단국대학교 화학과

(1993년 3월 25일 받음)

다중모드 레이저의 모드에 의해 광대역 CARS 분광에 생기는 모드 잡음을 줄이기 위하여 색소레이저의 증폭자발방출을 스톱스광으로 사용하여 CARS 분광을 측정하였다. 측정된 광대역 CARS 분광에 생기는 분광의 변조 폭에서 미량기체의 농도를 계산하는 새로운 방법을 제안하였으며, 변조 폭을 미량기체의 농도와 기체 온도 변화에 대하여 수치적으로 계산하고 이를 분석하여, 계산된 변조 폭을 농도와 온도에 대한 함수로 기술하였다. 이러한 방법을 Ar과 미량의 CO 혼합기체를 셀에 넣고 CO 농도를 측정하여 검정하였으며, 실제로 응용하여 대항류 버너의 불꽃 속의 CO 농도 분포측정에 응용하였다.

I. 서 론

코헤런트 라만 분광기술은 일반적인 접촉식 장치로 진단할 수 없는 고온 기체나 불꽃의 온도 및 기체농도를 측정하는데 널리 사용되고 있다. 이 기술은 프랑스의 Taran 등^[1] 이 농도 측정에 응용하고 난 후 그 응용범위가 급속히 넓어져 이제는 고온기체의 온도 및 밀도를 측정하는 기본기술로 확립되었다.^[2,7] 이 기술의 특징은 기체의 온도나 밀도를 비접촉식으로 측정할 수 있고, 측정범위가 온도는 $-100\sim 4000^{\circ}\text{C}$, 압력은 1 Torr-수십 기압까지로 매우 넓으며, 정확도도 온도는 약 2%, 밀도는 5% 정도로 비교적 우수하다. 따라서 연소, 고온기체의 유동 등을 연구하는데 가장 중요한 기술의 하나로 인정되고 있으며, 실제로 널리 사용되고 있다.

코헤런트 라만 분광학에 관련된 세부 이론이나 관련 기술은 지속인 발전을 거듭하여 현재는 비교적 잘 확립되어 있다. 이론 분야에서는 측정된 CARS 분광으로부터 온도나 밀도를 정확하게 계산하기 위하여 분광의 모양에 관한 연구가^[8,9] 주로 이루어져 왔는데 온도 범위 상은 $\sim 1500^{\circ}\text{C}$ 영역에 대한 연구가 완결된 상태이다.

장치나 세분기술에 관련된 연구로는 순간적인 측정을 위한 광대역 분광기,^[3] 공간분해능을 높이기 위한 상자형 위상정합 방식,^[10] 비공명항에 의한 분광선 모양의 변형을 막기 위하여 편광CARS 기술들이^[11] 연구되어 왔다.

CARS를 이용한 농도 측정은 일반적으로 다음 두가지 방법으로 이루어져 왔다. 첫째, 일반적으로 농도가 높은 기체의 CARS 신호의 전체 적분값은 농도에 비례하게 되므로 신호의 적분값을 측정하여 기체의 농도를 구하는데 이는 추가 되는 기체의 농도를 측정할 때 많이 사용한다.^[1] 그런데 측정하고자 하는 기체의 농도가 전체 기체에 대해 수 % 이하로 매우 작아지면, 다른 기체들의 비공명 신호가 측정하고자 하는 기체의 공명신호에 비해 크게 되고 서로 간섭하여 측정되는 CARS 신호의 모양이 변하게 되어 신호의 적분값과 농도와의 관계가 비례하지 않게 된다. 이런 경우에는 두번째 방법으로 분광신호의 모양^[4,12]으로부터 기체의 농도를 구하게 되는데 상세한 내용은 이론에서 다시 취급하기로 한다.

분광선의 모양을 CARS 이론적인 모델에 맞추어 농도를 구하는 일은 일반적으로 매우 힘들며 시간이 많이 소요된다. 뿐만아니라 광대역 CARS 분광기에서 스톱스

광으로 사용하는 색소레이저의 모드잡음(mode noise)이 분광에 포함되면 복잡한 작은 피크(peak)가 CARS 분광에 실려서 분광신호와 모델을 비교하는 일은 더욱 어려워진다.^[12] 최근 Ewart 등이^[14] 이러한 모드 잡음을 줄이기 위하여 색소레이저의 증폭자발 방출광을 스톱스광으로 사용하여 좋은 결과를 얻은 것이 보고되고 있으며, 본 연구실에서도 증폭자발 방출광을 스톱스광으로 사용하는 광대역 CARS 분광기를 제작하여 기체의 온도를 측정하여 얻은 실험 결과를 발표하였다.

본 연구에서는 광대역 CARS 분광기로 측정된 분광에서 비공명항과 공명항의 간섭에 의해 생긴 변조 폭으로부터 미량기체의 농도를 측정하는 방법을 연구하였으며, 이러한 방법을 기체 셀을 이용하여 검증하고, 대항류 버너(counterflow burner)에 응용하여 불꽃내부의 CO 농도 분포를 측정하였다.

II. 이 론

1. 비공명항 CARS 신호에 의한 미량기체 신호의 변조
일반적으로 CARS 분광의 세기 $I(\nu)$ 는 3차 비선형 감수율 $\chi^{(3)}(\nu)$ 의 제곱에 비례하여 다음 식으로 표현할 수 있다.^[15]

$$I(\nu) \propto |\chi^{(3)}(\nu)|^2 \quad (1)$$

여기서 3차 비선형 감수율 $\chi^{(3)}(\nu)$ 는 CARS로 측정하는 공간에 포함되는 각각의 기체에 대한 3차 비선형 감수율의 합으로 표현된다. CARS 신호 발생에 기여하는 3차 비선형 감수율은 라만 편이가 기체의 진동-회전 준위에 대응하는 공명항과 이러한 에너지 준위의 일치와 무관하게 발생하는 비공명 항의 합으로 기술된다. 이 때 측정하고자 하는 기체의 농도가 매우 낮아서-대개 수 % 정도-다른 기체들에 의한 비공명항이 측정 대상 기체의 공명항 보다 크게 되면 (1)식에서 CARS 분광의 세기를 기술한 3차 비선형감수율을 다음과 같이 표현할 수 있게 된다.

$$|\chi^{(3)}(\nu)|^2 = \chi_{nr}^2 + 2\chi' \chi_{nr} \quad (2)$$

여기서 χ_{nr} 는 기체전체의 비선형감수율의 비공명항이고 χ' 는 측정 대상 기체의 공명항의 실수부를 나타내며 분산에 관련된 항으로 비공명항과 간섭하여 변조되는 모양을 보인다.

공명항의 크기가 비공명항에 비해 작은 경우에 대하여 (1)과 (2) 식에 표현된 CARS 신호의 세기의 전형적인 모양이 그림 1에 그려져 있다. 그림에서 보는 CARS

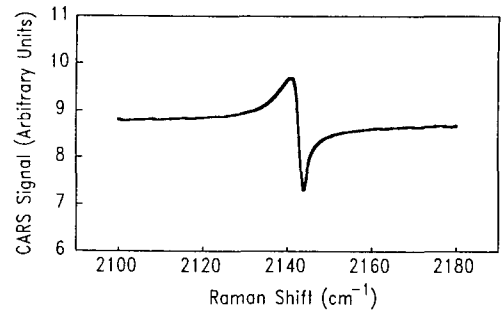


그림 1. A typical broadband CARS spectrum of CO in Ar. The concentration of CO is 0.78% and total pressure of the gas mixture was 1 atm.

신호는 비공명항 신호에 의해 전체적으로 떠 있고 공명항 신호가 비공명항 신호와 간섭하여 변조된 모양을 보여 주고 있다. 그리고 (2)식으로부터 이러한 변조의 폭이 미량기체의 농도에 비례하는 것임을 쉽게 알 수 있다. 실제로 CARS 신호의 변조 폭은 실험에 사용한 레이저의 선폭, 기체의 온도, 기체의 종류, 측정장비의 감응함수(response function) 등 여러가지 변수에 의존한다. 그러나 어떤 장치에 대한 변수는 실험에서 구할 수 있고, 실험 중에는 변하지 않으므로 대상기체와 측정장치가 정해지면 변조의 폭이 농도와 온도의 함수로 정의될 수 있다. 따라서 이 연구에서 사용한 분광기로 CO를 측정할 때 온도 및 농도 변화에 대하여 변조의 폭을 수치적으로 계산하고 이를 표현할 수 있는 간단한 함수 꼴을 찾았다. 이를 기준으로 하여 측정된 CARS 분광선 전체를 맞추는 대신 변조의 폭에서 농도를 직접 구하였다.

2. CARS 신호의 변조 폭으로부터 미량기체의 농도 계산

본 연구에서 제안한 변조의 폭에서 미량기체의 농도 측정하는 과정을 설명하면 다음과 같다. 미량기체가 포함된 기체 혼합물의 CARS 분광을 측정할 다음, 측정에 사용한 CARS 분광기의 특성을 알기 위하여 공명신호가 없는 기체-주로 불활성 기체인 Ar을 많이 사용-에서 측정된 비공명 CARS 신호를 측정한다. 그리고 공명항이 포함된 신호를 비공명 신호로 나누어 주어 규격화한다. 마지막으로 비공명항에 의한 신호와 변조 폭의 비를 구하여 그것에 대응되는 미량기체의 농도를 계산한다. 이러한 일련의 과정과 사용되는 분광선들의 모양을 그린 것이 그림 2(a)~(c)이다. 그림 2(a)는 Ar 속에 0.78%의 CO가 포함되어 있는 혼합기체에 대하여 CO CARS 분광을 측정할 것이고, 그림 2(b)는 공명신호가 전혀 없는

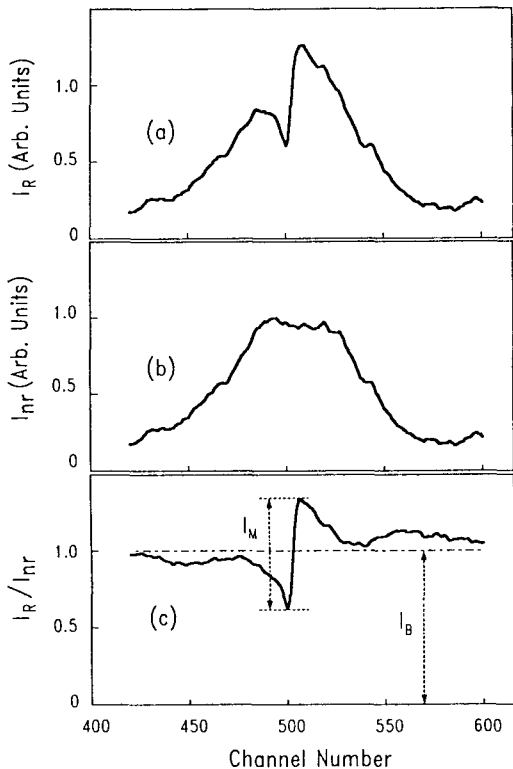


그림 2. Broadband CARS spectra, (a) 0.78% CO in 1 atm Ar in a static cell, (b) nonresonant signal of 1 atm Ar, and (c) normalized spectrum, spectrum (a) divided by spectrum (b).

불활성 기체인 Ar만 있는 셀에서 측정된 비공명 CARS 분광 신호이다. 그림 2(a)를 그림 2(b)로 나누어 주면 그림 2(c)에서 보는 규격화된 CARS 신호를 얻을 수 있게 된다. 그림 2(c)에서 비공명 신호의 크기 I_B 와 변조폭 I_M 의 비율 다음 식과 같이 정의하여 사용하겠다.

$$R = I_M / I_B \quad (3)$$

III. 실험장치

1. 광대역 CARS 분광기

CARS 분광기에 관한 설명은 이미 여러 논문^[15,16]에 발표된 바 있으므로 여기에서는 실험에 사용된 장치의 작동조건 등을 간략히 기술하겠다. 본 실험에 사용한 광대역 CARS 분광기의 전체 모습을 그린 것이 그림 3이다. 에너지가 약 150 mJ, 펄스 폭이 7~8 ns인 Q-스위칭 모드로 작동되는 Nd:YAG 레이저(Quantel YG660-10)의

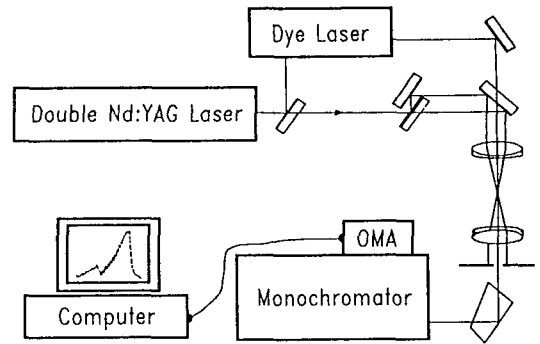


그림 3. Schematic diagram of a broadband CARS spectrometer.

2차 고조파를 이용하여 스톡스광으로 사용된 색소레이저를 동작시켰으며, 그 중 일부(에너지 수 mJ 정도)를 펌프광으로 사용하였다. BOXCARs 위상정합조건으로 실험하기 위하여 펌프광을 둘로 나누었으며, 두 펌프광의 상관관계(correlation)를^[18] 줄이기 위하여 약 5 cm 거리 지연을 두었다. 시료로 입사되는 두개의 펌프광과 스톡스광은 색수차를 줄인 렌즈(achromatic lens, $f=25$ cm)를 사용하였으며, 렌즈에서 세 광의 waist는 각각 약 2 mm였다. 두 펌프광의 중심 간의 간격은 5~6 mm였고, 건조한 Ar기체를 슬릿형 노즐로 불면서 측정된 CARS의 공간분해능은 2~3 mm였다. 펌프광과 스톡스 광 모두 수평으로 편광되었고, CARS 신호도 같은 편광으로 측정하였다. CARS 신호는 이중회절발분광기(Jovin-Yvon, U1000, $f=1$ m)에 설치된 다채널 광 분석기(optical multichannel analyzer, Princeton Instrum. EIRY1024)를 이용하여 측정하였다.

스톡스광은 광대역 CARS 분광을 얻기 위하여 두개의 색소셀과 레이저 뒤쪽에 설치된 회절발(1800 groove/mm)을 이용하여 증폭자발방출광을 발생시켜서 사용하였다.^[16] 이 때 스톡스광의 반치폭이 약 30 cm^{-1} 이었으며, 에너지는 약 8 mJ이었다. 색소레이저에서 사용한 색소는 rhodamine 640과 kiton red 620을 혼합하여 methanol에 타서 사용하였는데, 증폭자발방출 광의 중심파장은 rhodamine 640 색소의 농도를 바꾸어 주면서 변화시킬 수 있었다. 실험에서 사용한 색소 용액의 농도를 kiton red 620이 $7.2 \times 10^{-5} \text{ M}$ 에 고정시키고 rhodamine 640이 $3.2 \times 10^{-5} \text{ M}$ 로 맞추었을 때, 발생된 증폭자발방출의 중심파장은 600.6 nm로 CO CARS 분광의 측정에 적합하였다.

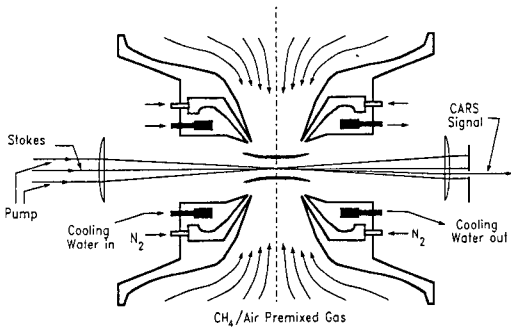


그림 4. Schematic diagram of a counterflow burner and beam propagation of CARS.

2. 대향류버너

본 연구에서 제안한 미량기체의 농도 측정방법을 실제 화염진단에 응용하기 위하여 대향류버너를 제작하였다. 대향류 버너(counterflow burner)은 화염구조가 간단하기 때문에 스트레치를 받는 화염구조의 이론적, 실험적 연구에 널리 사용되고 있다.^[20] 버너의 구조와 CARS 실험의 개요를 간단히 그린 것이 그림 4이다. 그림에서 볼 수 있듯이 같은 축상에 있는 두 개의 축대칭(axisymmetric) 예혼합기가 대향류를 이루어 두 개의 정상상태(steady) 평면화염을 형성한다. 유동장이 축방향이고 화염이 평면이므로 축방향의 일차원적인 측정으로 화염의 구조를 연구할 수 있다. 노즐 출구에서 균일한 유동을 얻기 위하여 단면적비가 80 : 1인 풍동형(wind-tunnel type) 확대-수축 노즐을 상하대칭으로 설치하여 대향류를 형성하였다.

실험에 사용한 버너의 출구 노즐 직경은 14.2 mm이고 두 대향노즐 사이의 간격은 14 mm이다. 노즐 주위에 동심원 형의 노즐(직경 17 mm)을 장치하여 그 틈새로 질소를 분출하여 산화제로 작용하는 외기의 영향을 차단하였으며 과열을 방지하기 위해서 노즐 주변에 수냉 자켓을 설치하였다. 상부와 하부버너에 동일한 농도의 메탄-공기 혼합기를 유입하였다. 노즐에서 혼합기체의 평균 출구속도는 1.25 m/s, 연료당량비는 0.608이다. CARS 계측은 그림 2에서 볼 수 있듯이 버너를 수직방향으로 이송시키면서 대향류 버너의 축상에서 행하였다.

IV. 수치 계산 결과

1. Sandia Code를 이용하여 계산된 R

1.1 농도 의존성

CARS 신호의 변조 폭과 비공명 신호의 세기에 대한

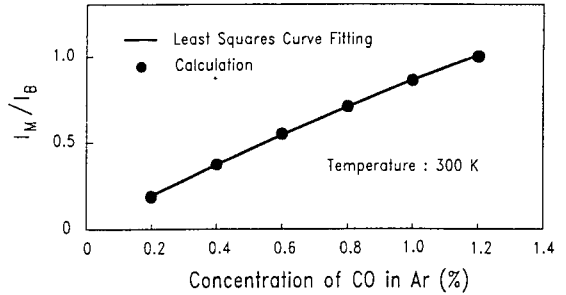


그림 5. Calculated ratio of the modulation dip to the nonresonant background as a function of concentration of CO in Ar. Solid line is the result of the least squares fitting with a function $a_1 \gamma + b_1 \gamma^2$, where γ is the concentration ratio of CO (see text), $a_1 = 0.978$, and $b_1 = -0.12$.

비 R의 특성을 알아보기 위하여 Ar에 CO가 미량 포함되어 있는 혼합기체의 CARS 신호를 수치적으로 계산하였다. 계산에 사용된 프로그램(CARSFIT code, Sandia National Laboratories)은 미국 샌디아 국립연구소에서 보내온 것이다. 이 때 계산에 사용한 신호검출장치의 감응함수의 반치폭은 1.0 cm⁻¹이었다. 측정된 펄스광의 선폭은 동작전압에 따라 조금씩 바뀌었는데 실험이 주로 행해진 동작전압 1.3 kV에서는 0.98 cm⁻¹이었으며, 계산에서 이 값을 사용하였다. 프로그램에서 CARS 분광선의 선폭은 수정된 지수함수에너지차 법칙(modified exponential energy gap law)^[19]으로 표현하였으며, 고립분광선(isolation line model) 모델을 이용하였다.

Ar 기체에 혼합된 미량의 CO 농도 변화에 대하여 R을 수치적으로 계산한 결과가 그림 5에 나타나 있다. 여기서 새로운 변수, 농도비 γ 를 다음과 같이 정의하여 사용한다.

$$\gamma = \delta(1 - \delta), \tag{4}$$

여기서 δ 는 미량기체의 농도이다. (2)식에서부터 계산된 R이 CO 농도와 Ar 농도의 비에 비례할 것이라는 것을 쉽게 가정할 수 있으며, 공명항의 제곱에 의한 신호 기여함을 고려하여 γ 의 다항식, $a_1 \gamma + b_1 \gamma^2$ 으로 계산된 R의 결과를 곡선맞춤 한 것이 그림에서 보이는 실선이다. 그림에서 곡선맞춤이 매우 좋은 것을 볼 수 있다.

1.2 온도 의존성

같은 방법으로 R을 온도 변화에 대하여 계산한 것이 그림 6이다. 일반적으로 비선형 신호의 전체적인 크기는 $1/T^2$ 로 줄어드는데, 본 연구에서 관심을 가지고 있는 R은 진동모드 0에서 회전라만 분광의 크기가 최대가 되는

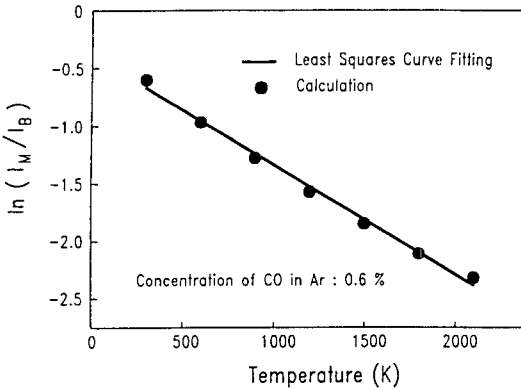


그림 6. Calculated ratio of the modulation dip to the nonresonant background as a function of temperature. Solid line is the result of the least squares fitting with a function $\exp(a_2T+b_2)$, where T is temperature, $a_2=-9.52 \times 10^{-4}$, and $b_2=-0.382$.

에너지 준위의 밀도와 관계되어 있다. 이것을 곡선마춤에 사용할 수 있는 간단한 함수꼴로 표현하는 것은 쉽지 않다. 직관적으로 밀도분포함수의 분모인 분배함수(partition function)에 온도에 대한 지수함수가 포함되어 있으므로 지수함수의 꼴로 마춤을 시도하였다. 현재 이것에 대한 정확한 해석함수의 꼴을 구하지 못하였으며, 계산된 R 값에 로그를 취하고 직선으로 마춤을 하였을 때 좋은 결과를 얻었다. 그림에서 실선은 온도 T 에 대한 지수함수 $\exp(a_2T+b_2)$ 로 곡선맞춤한 결과로 R 의 계산 결과와 잘 일치하고 있음을 볼 수 있다. 여기서 계산된 R 의 농도 및 온도 의존성을 동시에 표현하기 위하여, 농도 의존성에 대한 함수와 온도 의존성에 대한 함수를 결합하여 다음과 같은 함수를 사용하였다.

$$R = a(\gamma + b\gamma^2) \exp(cT) \tag{5}$$

이 함수 꼴을 이용하여 농도와 온도를 각각 0.2~1.2%, 상온 ~2100 K, 넓은 구간에서 계산된 R 을 곡선맞춤하여 보았으며, 그 결과가 그림 7에 그려져 있다. 그림에서 (5)식에 기술된 함수가 넓은 구간의 농도와 온도에 대하여 R 과 잘 맞음을 확인할 수 있다.

아울러 변조폭과 비공명 신호의 크기에 대한 비 R 을 이용하여 미량기체의 농도를 계산하는 경우 반드시 고려하여야 할 사항이 있는데, 그것은 측정하는 대상기체의 조성이 어떤 이유로 바뀌게 되면 농도 측정에 기준이 되는 비공명 신호의 크기가 바뀌어 오차가 생기게 된다는 것이다. 예를 들면 불꽃 내부를 살펴보면 불꽃이 생기기

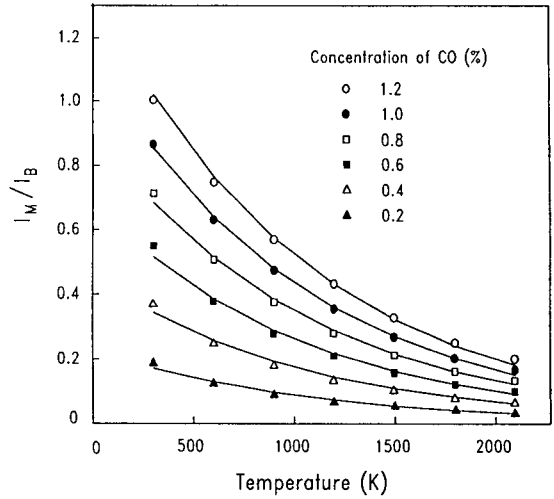


그림 7. Calculated ratio of the modulation dip to the nonresonant background as a function of temperature for various CO concentration. Solid lines are results of the least squares fitting with a function $a(\gamma + b\gamma^2)\exp(cT)$, where $a=1.15$, $b=-2.61 \times 10^{-2}$, and $c=-9.55 \times 10^{-4}$.

전과 생긴 후의 기체 조성이 바뀌어져서 비공명항에 의한 신호의 세기 계산에 보정이 필요하게 된다. 이러한 점을 고려하기 위하여 비공명항이 바뀌는 경우 농도비 γ 에 대한 정의를 다음식으로 다시 정의하였다.

$$\gamma = \delta / (1 - \delta)(1 + \Delta), \tag{6}$$

여기서 Δ 는 비공명항의 변화율이다.

V. 실험 결과 및 분석

1. 기체셀에서 CO 농도 측정실험

본 연구에서 제안된 미량기체 측정방법에 대한 검증을 위하여 Ar 속에 미량의 CO가 포함된 혼합기체를 스테인레스 셀(길이 ~17 cm)에 넣고 CARS 신호의 변조폭을 실험적으로 측정하였다. 실험에서 전체 기체의 압력은 1 기압이었고, CO의 농도는 0.05에서 1.3%까지 변화시켰다. 앞서 이론에서 설명한 바와 같이(그림 2(a)~(c) 참조) 측정된 CARS 신호에서 비공명신호를 나누어 규격화하여 (3)식의 R 을 구하였다. CO 농도변화에 대해 실험에서 구한 R 이 그림 8에 ●로 그려져 있다. 그림에서 실선은 (5)식으로 계산한 것으로 실험과 비교적 잘 일치하고 있음을 볼 수 있다. 실험에서의 오차는 측정구간 내에서 약 5% 였다.

2. 대향류버너 불꽃 내부의 CO 농도 측정실험

본 연구에서 제안된 방법을 이용하여 대향류 버너의 메탄/공기 예혼합 불꽃 내부 CO 농도 분포를 측정하였다. (5)식과 (6)식의 전개과정에서 이미 언급하였듯이 미량기체의 농도를 R 에서 구하기 위해서는 비공명 신호의 크기 변화와 아울러 CARS로 측정하는 측정부위 내의 기체온도를 알아야 한다. 따라서 CO 농도를 측정하기 앞서 불꽃 내부의 온도 분포를 질소의 CARS 분광으로부터 구하였으며, 그 결과가 그림 9에 그려져 있다. 그림에서 온도값은 실험에서 얻어진 질소 CARS 분광을 CARSFIT으로 맞추어 구한 것이다.

그림 2(b)의 신호-파장의 변화에 무관하므로 일반적으로 비공명신호라고 부름-의 세기는 혼합기체 내부의 기체 중 각각의 비공명감수율에 의한 기여항과 먼 공명항(off resonance term)에 의한 기여항을 합한 것이다. 이

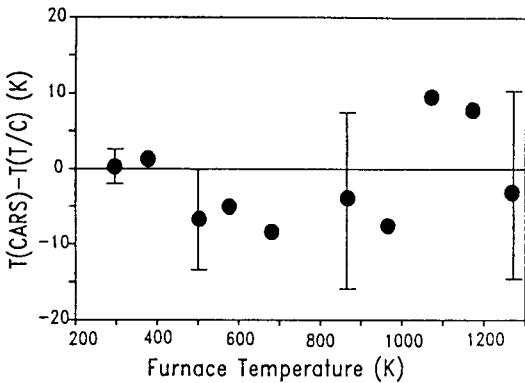


그림 8. Comparison of the ratios R obtained by the experiment and by the calculation. Pressure of gas mixture of CO and Ar is 1 atm.

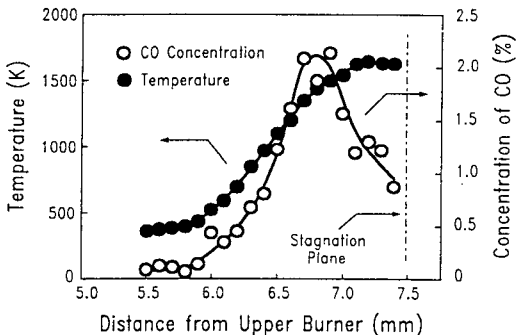


그림 9. Profiles of temperature and CO concentration measured along the axis of the CH_4 /air premixed flame of a counterflow burner. Solid lines are smooth connections of data points.

때 문헌에서 알려져 있는 비공명 감수율을 적용하여-질소, 산소, 메탄의 비공명 감수율^[4,20] 각각 8.5×10^{-18} , 9.75×10^{-18} , $22.13 \times 10^{-18} \text{ cm}^3/\text{erg} \cdot \text{amagat}$ 라고 하여-계산한 비공명감수율은 $9.5 \times 10^{-18} \text{ cm}^3/\text{erg} \cdot \text{amagat}$ 이었다. CO CARS 영역에서 질소의 먼 공명항의 크기는 자신의 비공명항의 29.4%였다(비선형감수율의 크기로는 약 $2.8 \times 10^{-18} \text{ cm}^3/\text{erg} \cdot \text{amagat}$ 이다). 이같은 온도에 따라 다소 변하는데 온도가 300 K에서 2000 K까지 변하는 동안 약 4% 정도 변하였다. 그리고 메탄/공기 예혼합 불꽃 내부에서 비공명 감수율의 크기는 약 14%가 변하는 것으로 알려져 있다.^[21] 따라서 우리는 비공명 감수율이 그림 9에서 보는 온도 변화에 비례하여 총 14%가 변한다고 가정하였다.

실험에서 측정된 CO CARS 분광으로부터 R 을 계산하고 이것을 (5)식 함수를 이용하여 농도비 γ 를 구한 다음 (6)식을 이용하여 비공명항이나 먼 공명항의 변화에 의한 항을 보정하여 CO 농도를 구하였다. 이 때 메탄/공기 혼합기체의 비공명 감수율의 계산 값이 Ar의 비공명 감수율의 값($9.6 \times 10^{-18} \text{ cm}^3/\text{erg} \cdot \text{amagat}$)과^[21] 비슷하여 (5)식의 계수 a, b, c 는 그림 7의 설명에 기술된 Ar과 CO에 대하여 구한 값을 사용한 후 비공명 감수율의 변화분을 (6)식으로 보정하였다. 실험에서 구한 CO 농도의 분포가 그림 9에 그려져 있다. 메탄과 산소가 반응하여 온도가 올라가는 영역에서 CO가 발생할 것으로 보고 이 부분에서 CO 농도를 측정하였다. 그림에서 윗 버너에서의 거리가 5.5~5.9 mm 영역에서 측정된 CO 농도는 이 방법의 측정한계 이내에 있는 것으로 판단된다. 측정된 CO 농도의 정성적인 모습과 최대치 ~2%는 수치적인 모델로 계산한 것과 잘 일치하고 있다.^[22]

VI. 결 론

증폭자발방출광을 스톱스광으로 사용하는 광대역 CARS 분광기를 이용하여 미량기체의 농도를 측정하는 연구를 수행하였다. CARS 분광의 전체를 이론적인 모델에 맞추는 대신에 CARS 분광에 나타나는 변조폭을 이용하여 미량기체의 농도를 측정하는 방법을 제시하였다. 변조폭을 온도와 농도 변화에 대하여 수치적으로 계산한 후, 온도와 농도를 변수로 표현되는 함수 꼴을 찾았다. 이 방법의 검증하기 위하여 기체 셀에 Ar과 미량의 CO를 넣고 CO의 농도를 측정하였으며, 그 응용으로 대향류 버너의 불꽃 내의 CO 농도 분포를 측정하였다. 이러한 방법의 검지도는 상온에서는 약 0.1% 정도, 1500 K 이상의 고온에서는 약 0.3% 정도로 추정

되었다.

감사의 말씀

저자는 본 연구를 위하여 최근에 개발된 PC용 CARS-FIT 프로그램을 무상으로 보내준 미국 샌디아 국립연구소의 L. A. Rahn과 R. L. Farrow에게 깊은 감사를 드린다.

이 연구는 과기처 첨단요소과제 지원으로 수행된 것이다.

참 고 문 헌

- [1] R. E. Regnier and J. P. E. Taran, Appl. Phys. Lett. **23**, 24 0(1973).
- [2] A. Stenhouse, D. R. Williams, J. B. Cole, and M. D. Swords, Appl. Opt. **22**, 3819 (1979).
- [3] G. L. Switzer, W. M. Roquemore, R. B. Bradley, P. W. Schreiber and W. B. Rho, Appl. Opt. **18**, 2343 (1979).
- [4] R. J. Hall and A. C. Eckbreth, "CARS Application to Combustion Diagnostics," in *Laser Applications*, J. F. Ready and R. K. Erf, Eds. (Academic Press, Orlando, 1984), Vol. 5, p. 213.
- [5] F. Y. Yueh and E. J. Beiting, Appl. Opt. **27**, 3233 (1988).
- [6] D. Hancock, P. O. Hedman, and S. K. Kramer, Combustion & Flame **87**, 77 (1991).
- [7] M. Alden and W. Wendt, Appl. Spectro. **42**, 1421 (1988).
- [8] M. L. Koszykowski, R. L. Farrow and R. E. Palmer, Opt. Lett. **10**, 478(1985).
- [9] D. A. Greenhalgh, "Quantitative CARS Spectroscopy," in *Advances in Non-Linear Spectroscopy*, R. J. H. Clark and R. E. Hester, Eds. (John Wiley & Sons, Chichester, 1988), Chap. 6, p. 193.
- [10] A. C. Eckbreth, Appl. Phys. Lett. **32**, 421 (1978).
- [11] L. A. Rahn, L. J. Zych and P. L. Marttern, Opt. Commun. **30**, 249 (1979).
- [12] J. W. Hahn, et al., Appl. Spectro. **47**, 710 (1993).
- [13] D. A. Greenhalgh and S. T. Whittle, Appl. Opt. **24**, 907(1985).
- [14] P. Ewart, Opt. Commun. **55**, 124(1985).
- [15] A. C. Eckbreth, *Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species* (Abacus Press, Tunbridge Wells, 1988), Chap. 6, p. 220.
- [16] 한재원, 박승남, 이은성, 이충희, 응용물리 **4**, 314 (1991).
- [17] 박승남, 한재원, 이충희, 한국광학회지 투고예정, 1993.
- [18] L. A. Rahn, R. L. Farrow and R. P. Lucht, Opt. Lett. **9**, 223 (1984).
- [19] 한재원, 박승남, 이은성, 이충희, 강경태, 정석호, 광학회지 **3**, 266 (1992).
- [20] A. G. Gaydon and H. G. Wolfhard, *Flames* (Their structure, radiation and temperature), 4th Ed. (Chapman and Hall, London, 1979), pp. 162-165.
- [21] R. L. Farrow, R. P. Lucht, G. L. Clark and R. E. Palmer, Appl. Opt. **24**, 2241(1985).
- [22] S. D. Lee, "Numerical Study on the Interaction Lean Metane Flames," MS Thesis, Seoul National University, Seoul, Korea, 1993.

Measuring CO Concentration in a Flame with Broadband CARS

J. W. Hahn, S. N. Park, S. H. Lee and C. Rhee
*Temperature Laboratory, Korea Research Institute of Standards and Science,
Taejon, 305-340, Korea*

K. T. Kang and S. H. Chung
*Department of Mechanical Engineering, Seoul National University,
Seoul 151-742, Korea*

C. Y. Choi and Y. D. Huh
Department of Chemistry, Dankook University, Seoul 140-714, Korea

(Received: March 25, 1993)

To reduce the mode noise induced from a multimode dye laser, a modeless laser generating amplified spontaneous emission was used as Stokes beam of the broadband CARS. A new technique for measuring species concentration from the modulation dip of nonresonant background of broadband CARS spectrum was proposed. The modulation dip was numerically calculated and fitted as a function of the concentration of the minor species and temperature of gas sample. We applied this technique in measuring CO concentration in a static cell and also the profile of CO concentration in a CH₄/air premixed flame of a counterflow burner.