

## 연소진단용 이동형 광대역 코헤런트 반 스톡스 라만 분광기에 관한 연구

박철웅\*, 박승남\*, 한재원\*\*, 이종웅\*\*\*

### Study on Mobile Broadband Coherent Anti-Stokes Raman Spectrometer For Combustion Diagnostics

Chul-Woung Park\*, Seung-Nam Park\*, Jae-Won Hahn\*\*, Jong-Ung Lee\*\*\*

Key words : CARS ; coherent anti-Stokes Raman spectroscopy, temperature measurement of combustion, flat flame burner, propane air mixture flame

#### Abstract

We construct a mobile broadband coherent anti-Stokes Raman spectroscopy system to measure the temperature of combustion gases. To improve the accuracy of CARS temperatures due to Stokes lasers, a modeless dye laser is constructed. A monochromator to disperse CARS spectra is also constructed in the spectrometer for easy portability. The accuracy of CARS temperature, measured in graphite tube furnace in reference to a radiation pyrometer, is better than 2 % from 1000 K to 2400 K. The CARS temperature error due to the variation of the spectral distribution of the modeless laser is measured to be less than 1.5 % during five hours operation. As a demonstration of combustion diagnosis, we applied the spectrometer to measure the temperature distribution of the propane air premixed flame.

#### 1. 서론

빛에 의하여 분자에 유도된 전기 쌍극자가 분자의 진동회전 운동과 결합하여 새로운 진동수의 빛을 발생시키는 것을 라만 산란이라고 부른다. 라만 산란에 의해 발생된 빛의 주파수가 분자의 진동 주파수만큼 작아진 것을 스톡스 라만 산란이라 부르고, 커진 것을 반 스톡스 라만 산란이라 한다.

CARS(coherent anti-Stokes Raman scattering)는 측정 매질에서 산란되는 반스톡스 광의 세기를 크게 하고, 방향성을 갖게 하기 위하여 매질에 펄프 광과 스톡스광이라고 부르는 두 개의 파장이 다른 레이저광을 사용한다. 펄프광의 주파수( $\omega_1$ )와 스톡스광의 주파수( $\omega_2$ ) 차이가 매질의 라만 진동수( $\omega_R = \omega_1 - \omega_2$ )와 같아지면 분자의 진동 회전 준위와 펄프광이 가간섭적으로 결합하면서 새로운 주파수의 CARS 신호( $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$ )가 발생된다. CARS 신호의 스펙트럼을 분석하면 매질의 온도, 농도 등 물리적인 성질을 측정할 수 있다. CARS 신호를 발생시키기 위해서는 펄프광의 주파수가 고정되어 있을 때 스톡스 레이저를 주사하던지(주사형 CARS

\*한국표준과학연구원 양자연구부

\*\*한국표준과학연구원 양자연구부,정희원

\*\*\*청주대학교 광학공학과

), 측정 영역보다 넓은 분광 분포를 갖는 스투스 레이저를 사용한다(광대역 CARS). 주사형 CARS는 좁은 선폭의 스투스 레이저로 측정 파장대역을 주사하여 스펙트럼을 얻기 때문에 한 스펙트럼을 얻기 위해 긴 주사 시간이 필요하다. 따라서 고분해능의 스펙트럼을 얻을 수 있는 장점에 비해 정상상태의 연소 측정에 사용할 수밖에 없는 제한이 있다. 선폭이 넓은 색소 레이저를 스투스 광으로 사용하는 광대역 CARS는 레이저 펄스마다 전체 CARS 스펙트럼의 얻을 수 있으므로 시간 분해능이 펄스 레이저의 지속 시간인 수 ns로 짧아져서 난류연소와 같이 온도나 농도가 급격히 변하는 연소상태의 진단이 가능하다.<sup>(1)(2)</sup>

큰 CARS 신호를 발생시키기 위해서는 신호를 생성시키는 광자들과 발생하는 CARS 광자의 위상을 일치시켜 주어야 한다. 가장 간단한 동일선 위상접합(collinear phase matching)은 펌프광과 스투스 광이 동일선상을 진행하면서 그 선상을 따라 CARS 신호가 발생하는 것으로 신호발생거리가 길기 때문에 큰 신호가 발생되나 공간 분해능은 수 cm이다. 이에 반하여 펌프광과 입사광이 서로 각도를 가지고 진행되는 상자형 CARS 위상접합(boxcars CARS phase matching)은<sup>(3)</sup> 신호가 매우 작은 부분에서 발생되어 높은 공간 분해능을 가진다. 집속거리 20-30 cm의 렌즈를 사용하는 경우 상자형 CARS 위상접합은 레이저가 진행하는 방향과 수직인 방향으로 20-200  $\mu\text{m}$ 의 공간분해능을 갖고, 레이저광이 진행하는 방향으로 2-3 mm이 내의 공간분해능을 가진다.

광대역 스투스 레이저를 사용하여 시간 분해능을 높이고, 상자형 위상접합 기술을 적용하여 공간분해능이 향상되면서 CARS의 응용 범위는 주로 연소상태의 질소 기체 온도 및 CO 성분 측정<sup>(4)(5)(6)</sup>, 제트화염의 구조분석<sup>(7)</sup>, 플라즈마의 공정 측정<sup>(8)</sup>, 등광범위한 분야에 활용되고 있다. 특히 내연기관의 연소실 같이 매우 빠른속도로 난류연소가 일어나는 곳에서의 측정도 응용되고 있으며,<sup>(9)(10)(11)</sup> 고압상태에서 수소기체에 의한 CARS 신호 해석 기술이 개발되어 수소연소 가스의 온도 측정에도 사용된다.<sup>(12)</sup>

위와같은 넓은 응용범위에 CARS 장치를 사용

할 수 있으나, 실험실에서 사용되는 대부분의 CARS 장치는 구조가 너무 복잡하여 실제 연소기기의 진단에 이동하여 사용하는 것은 거의 불가능하다. 연소 진단에 사용되는 이동형 광대역 CARS 분광기는 Andreson<sup>(13)</sup>에 의하여 최초로 제작된 후 몇몇 회사에서 상용으로 제작되고 있다. 최근 광대역 CARS 기술은 무모드레이저를 스투스레이저로 사용하여 온도 측정의 정확도가 크게 향상되었다.<sup>(14)</sup> 이제 까지 스투스 광원으로 다중모드(multimode)로 동작되는 색소레이저가 주로 사용되어 왔는데, 최근 Snowdon et al.이 증폭자발 방출광을 이용한 무모드 레이저를 사용하여 광대역 CARS 실험을 수행한 결과를 발표하였다. 이 무모드광은 색소 셀에서 발생하는 증폭 자발 방출광인데, 그들은 이러한 무모드 레이저를 사용하여 모드다툼에 의해 레이저 펄스마다의 모드간의 세기요동에 의하여, CARS 스펙트럼에 생기는 잡음을 크게 줄일 수 있었기 때문에, 광대역 CARS의 온도 측정 정확도 및 정밀도를 획기적으로 향상시킬 수 있었다. 그러나 그가 사용한 무모드레이저는 파장선택을 위하여 회절격자를 사용하여 광정렬이 어렵고, 레이저 출력의 스펙트럼의 중심파장의 변화때문에 파장 안정화장치가 필요하다는 보고가 있었다.<sup>(15)</sup>

이 논문에서는 광대역 CARS의 온도 측정 원리를 정리하고 이 원리에 따라 연소 가스내의 질소의 온도를 측정 할 수 있는 이동형 CARS 분광기를 제작한 내용을 기술하였다. 광학 정렬이 쉽고 구조가 간단하며, 출력 파장 스펙트럼이 안정한 무모드 레이저와 CARS신호의 스펙트럼 측정을 위한 단색기의 제작 내용도 함께 기술하였다. 흑연관 전기로를 표준 복사온도계와 CARS 분광기로 측정하여 CARS온도 측정의 정밀 정확도를 알아 보았으며, 제작한 무모드 색소레이저의 출력 스펙트럼의 변화를 측정하여 CARS 분광기의 온도 측정 안정도를 측정하였다. 평면 화염을 만들 수 있는 메케나 버너의 온도를 측정하여 이 CARS 분광기를 사용하여 연소 진단에 응용할 수 있는 가능성을 보였다.

## 2. 광대역 CARS의 온도 측정 이론

CARS 신호의 세기는 신호를 발생시키는데 사용한 펌프광의 세기  $I_1$ , 스투스광의 세기  $I_2$ 와 대상매

질의 3차 비선형 감수율  $\chi^{(3)}$  로 다음 식과 같이 표현된다.<sup>(5)(16)</sup>

$$I_3(\omega_3) \propto \omega_3^2 I_1(\omega_1)^2 I_2(\omega_2) |\chi^{(3)}|^2 \quad (1)$$

여기서  $\omega_1, \omega_2$ 는 펄프광과 스톡스광의 진동수를 말하고,  $\omega_3$ 는 CARS광의 주파수를 말하며, CARS 신호는 펄프광의 진동수가 라만 진동수( $\omega_R$ )라 부르는 측정대상 가스분자의 라만 진동수와 일치하면 ( $\omega_R = \omega_1 - \omega_2$ ) 공명하여 증폭된다. (1)식으로 표시되는 CARS 신호 스펙트럼을 신호 발생에 사용한 레이저의 선폭을 고려하여 기술하면, 레이저의 선폭과 비선형감수율의 휘감기 적분(convolution)을 곱한 형태로 아래식처럼 표시된다.

$$I_3(\omega_3) \propto \int d\omega_1 I_1(\omega_1) \int d\omega_2 I_1(\omega_3 - \omega_1 + \omega_2) I_2(\omega_2) |\chi^{(3)}(\omega_1 - \omega_2)|^2 \quad (2)$$

광대역 CARS의 경우 스톡스레이저의 분광분포는 신호측정에 사용하는 단색화장치의 분산능력과 다채널 광검출기의 감응 능력에 의한 슬릿 함수로 대체되며, 스톡스레이저의 선폭이 펄프레이저의 선폭 보다는 매우 넓기 때문에  $I_2$ 는 휘감기 적분의 바깥으로 나와 아래 식과 같다.

$$I_3(\omega_3) \propto I_2(\omega_1^{(0)} - \omega_3) \int d\omega_3 T(\omega_3 - \omega_3) \int d\Delta I_1(\omega_3 - \Delta) |\chi^{(3)}(\Delta)|^2 \quad (3)$$

여기서  $\omega_1^{(0)}$ 은 펄프레이저의 중심파장이고,  $\Delta$ 는 ( $\omega_1 - \omega_2$ )가 공명 진동수에서 벗어난 정도이며,  $T$ 는 단색기와 다채널 광검출기로 구성된 검출 장치의 슬릿 함수이다. 광대역 CARS 측정시 스톡스광은 선폭이 넓은 색소레이저를 이용하므로 색소레이저의 세기가 파장에 따라 다른 것을 보정해야한다. 이것을 위하여 측정하려는 매질과 라만 공명위치가 겹치지 않는 기체의 CARS 신호를 측정하여 (3)식의 CARS 신호에서 나누어준다. 이 신호를 비공명 CARS신호 (nonresonant CARS signal)로 부른다. 비공명 CARS 스펙트럼의 세기( $I_{NR}$ )는 비공명 3차 비선형 감수율( $\chi^{NR}$ )이 파장변화에 따라 일정하므로 (3)식의 휘감기 적분은  $\omega_3$ 에 무관하며, 펄프레이저와 슬릿함수의 적분은 상수가 되어 (4)식으로 표현된다.

$$I_{NR}(\omega_3) \propto |\chi^{NR}|^2 I_2(\omega_1^{(0)} - \omega_3) \quad (4)$$

따라서 비공명 신호 스펙트럼은 색소레이저의 스펙트럼 모양과 같아지고, 비공명신호의 세기로 규격화한 광대역 CARS 신호의 모양은 (5)식으로 표현된다.

$$I_3(\omega_3)/I_{NR} \propto \int d\omega_3 T(\omega_3 - \omega_3) \int d\Delta I_1(\omega_3 - \Delta) |\chi^{(3)}(\Delta)|^2 \quad (5)$$

따라서 온도 변화에 따른 측정대상 기체의 비선형 감수율을 계산하고, 이것을 펄프레이저의 분광분포와 슬릿 함수로 휘감기 적분하면, 이론적인 CARS 스펙트럼이 얻어진다. Fig.1은 이론적으로 계산한 질소기체의 CARS 스펙트럼의 모양으로 스펙트럼의 모양이 온도에 따라 크게 변하고 있음을 알 수 있다. 그림의 세로축은 상대적인 세기를 나타낸다. 광대역 CARS 장치는 이론적으로 계산한 CARS 스펙트럼과 측정된 스펙트럼을 비교하여 측정온도를 얻는다.

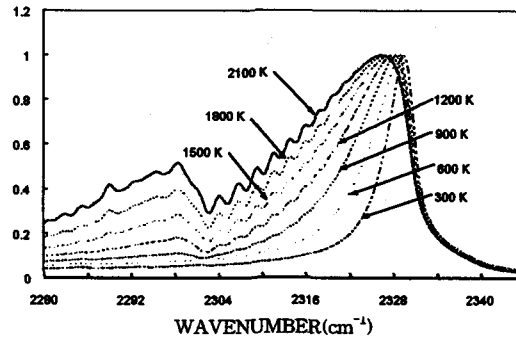


Fig 1. Theoretical CARS spectrum of Nitrogen.

### 3. 광대역 CARS 장치

이 연구에서 제작한 이동형 광대역 CARS분광기는 Fig.2와 같이 크게 세 부분으로 구성되어 있다. 광원부는 펄프광을 공급하는 레이저와 무모드 레이저를 이용한 스톡스 레이저, 이 레이저광들을 위상정합시키는 부분으로 구성되어 있다. 수광부는 발생된 CARS신호의 배경신호를 공간적으로 분리하는 부분과 CARS 신호의 스펙트럼을 얻기 위한 단색기(monochromator)로 구성되어 있다. 수광부에서 CARS 신호는 섞여 있는 펄프레이저와 스톡스레이

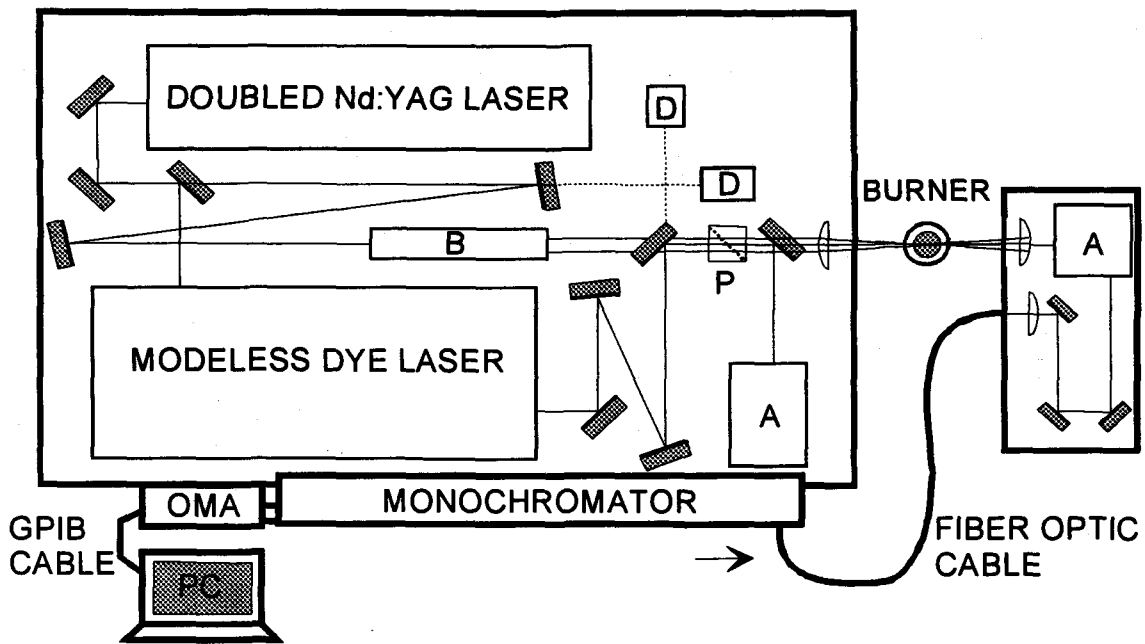


Fig. 2. Optical schematic diagram of the broadband mobile CARS system.

A, screen for alignment; B, beam divider; D, detector; P, crystal polarizer.

저에 의한 배경광을 제거하여 광섬유를 통해 단색기로 입사한다. 광대역 CARS 분광기에서 CARS 신호를 분광하기 위한 단색기는 지금까지는 주로 상용단색기가 사용되었다. 그러나 상용 단색기는 측정과장의 영역이 넓고 기능이 다양하기 때문에, CARS 분광기의 부품으로 함께 이동하며 사용할 경우에 크기가 크고, 장치의 정렬을 고정된 상태로 유지하기 어렵다. 따라서 이 연구에서는 CARS 신호 측정 전용 단색기를 부품수를 최소화하여 설계 제작하여 분광기내부에 설치하여 실제로 사용되는 연소기기에 이동하여 측정할 수 있도록 하였다. 세 번째 부분은 CARS 분광신호를 측정하여 결과를 분석하는 프로그램으로 CARS 신호의 측정과 결과 분석의 편리성을 위하여 신호측정과 결과분석이 동시에 가능한 측정 프로그램을 작성하여 한 스펙트럼을 측정한 후 1초 이내에 온도를 알 수 있다.

### 3-1. 광대역 CARS 장치의 광원부

제작된 광대역 CARS 분광기의 광원부는 Fig. 2에서 Nd-YAG레이저와 무모드레이저가 설치된 부분이다. 펌프레이저는 Nd-YAG레이저(Continium사 Surelite2)의 2차고조파를 사용하였다. 이 레이저는

10 Hz로 작동하며 동작시간폭은 7-9 nsec이고 최대 2차고조파 출력은 250 mJ/p 이다. 광원부의 Nd-YAG레이저는 2 개의 반사거울을 거쳐서 분할거울 (beam splitter)로 입사된다. 분할거울에 입사한 레이저 출력의 80%는 무모드 색소 레이저를 펌핑하는데 사용되고, 나머지 20%는 상자형 CARS 위상정합을 위하여 2개의 펌프레이저를 만드는데 사용된다. 펌프레이저는 광분할장치로 입사하기 전에 색소레이저와의 시간일치를 위하여, 2개의 반사거울을 이용하여 시간지연(약 2 m)을 하였으며 2배의 갈릴리안 광속확대기를 역으로 설치하여 직경을 줄여서 스톱스레이저의 직경과 비슷하게 만들었다. 광분할장치는 레이저의 높이나 방향은 바뀌지 않고 펌프광을 두개로 만들수 있는데, 두개의 펌프광의 방향, 간격등의 미세조정이 가능하다. 광분할기에서 2개의 펌프광의 광로는 상자형 CARS신호 발생시 펌프광의 상호간섭에 의한 신호 잡음을 감소시키기 위하여 서로 8 cm의 광로차가 있다. 광분할기에서 나온 2개의 펌프레이저와 색소레이저가 합쳐지는 부분에는 반달형태의 색소레이저용 전반사거울을 설치하여 펌프광은 거울이 없는 부분으로 통과하고, 색소레이저는 반달거울에서 반

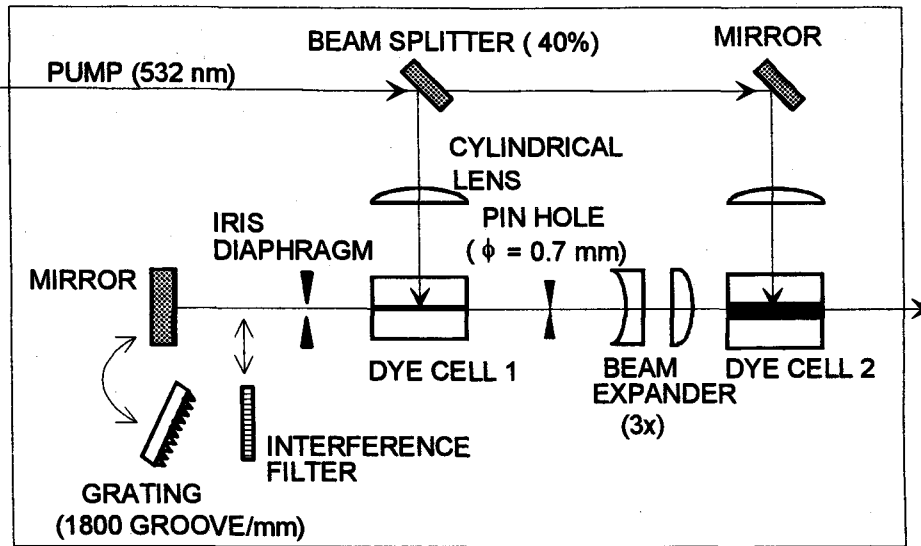


Fig. 3. Schematic diagram of the modeless dye laser.

사하여 상자형 CARS 위상정합에 적당한 광정렬이 얻어진다.

광원부를 구성하는 모든 광학 부품의 고정대는 높이가 바뀌거나, 진동에 의한 영향을 최소화시키기 위하여 높이를 고정된 형태로 제작하였으며, 광학부품이 설치되는 광학 테이블은 일정한 온도로 수냉하여 광원부의 광학부품이 주변온도 변화에 의한 영향을 감소시켰다. CARS 측정실험 중 CARS 신호의 세기는 레이저 빔의 정렬이 바뀌거나 펌프 레이저와 스톱스레이저의 세기가 변하는 등 여러 가지 이유로 변할 수 있다. 따라서 CARS신호의 세기가 바뀌었을 때 적절하게 대응 할 수 있도록 레이저의 광정렬을 CARS신호의 발생전후에 확인해 볼 수 있는 레이저 광정렬 표시용 스크린과 펌프레이저와 스톱스레이저의 세기측정 장치를 설치하였다.

본 연구에서 제작한 무모드 색소 레이저의 개략도를 그린 것이 Fig.3이다. 그림에서 보는 바와 같이 장치는 광학적인 정렬을 쉽게 하기 위하여 부품들을 나란히 배치하였으며, 사용한 버썬 색소 셀(Buthune dye cell)의 펌핑을 쉽게하고, 공간적으로 세기가 균일한 자발 방출광을 얻기 위하여 두 개의 셀을 사용하였다. 색소셀은 출력광의 발산(divergence)을 최소화 하기위해 첫번째는 직경이 1.3 mm이고 두번째 증폭부분은 직경이 2 mm로 제작되었다. 색소 셀에서 펌핑되는 레이저와의 반

응 길이는 20 mm이다. 무모드 레이저를 펌핑하기 위하여 입사된 Nd-YAG레이저는 실린더형태의 렌즈에 의하여 색소셀에 집속되며, 첫번째 셀의 광정렬시 두번째 셀에서 발생하는 증폭 자발 방출광에 의하여 방해 받지 않기 위해 두번째 셀의 앞에 빔차단기를 설치하였다. 첫번째 셀에서 후방으로 발생된 증폭 자발 방출은 거울에서 반사되어 첫번째 셀을 다시 지나면서 증폭되며, 지나온 광은 광의 직경과 증폭용 셀의 직경과 맞추기 위해 빔확대기를 설치하였다. 증폭용 셀의 창과 빔확대기에 사용된 렌즈는 모두 같은 방향으로 비스듬히(8° 정도) 설치하여 반사광에 의한 공진기의 형성을 막았다. 파장 선택을 위하여 투과폭이 좁은 간섭필터를 거울과 첫번째 색소셀 사이에 설치할 수 있게 장치하였으며, 회절격자를 사용하여 실험할 경우에는 반사거울 위치에 회절격자를 설치하였다.

### 3-2. 광대역 CARS 장치의 수광부

상자형 위상 정합으로 발생된 CARS신호는 펌프광과 스톱스광과는 다른 방향으로 진행한다. 따라서 Fig. 2의 오른쪽 부분의 신호 검출 장치를 이용하면 CARS신호를 쉽게 분리 할 수 있다. 신호 검출부에 입사한 레이저 광 중 일부는 위치 표시 스크린 쪽으로 반사되어 레이저 빔의 정렬을 확인하는데 사용된다. 신호 검출 부에 입사한 CARS신호는 2개의 펠린-브로커(pellin-broca) 프리즘을 거

친 후, CARS 신호용 반사거울을 거쳐서 오목렌즈를 통하여 직경 200  $\mu\text{m}$ 의 광섬유(Oriel사 77530)에 입사하게된다. CARS신호 반사거울과 오목렌즈 사이에는 펌프레이저와 스톱스레이저를 차단하는 필터를 설치하여 레이저 정렬시 CARS 신호를 광 증폭기로 측정하는 경우에 광 증폭기의 손상을 방지하였다. 신호 검출부를 통과한 CARS신호는 단색기를 통하여 분광되어 신호 스펙트럼이 구해진다.

단색기는 광원에서 특정파장의 빛 만을 선택적으로 분리하고자 할 경우에 사용하는 기기로 CARS 신호의 분광 스펙트럼의 측정에 사용된다. 단색기는 최소의 부품으로 제작되어 이동하여 사용할 수 있도록 광원부의 광학대 아래에 설치하였다. 본 연구에서 개발된 단색기는 질소 CARS신호(475nm 근처) 측정전용 단색기로, 직경 200  $\mu\text{m}$ 의 광섬유를 입구 슬릿으로 사용하고, 1개의 오목 회절격자 사용한다. 단색기에 사용한 오목격자(Milton-Roy Ltd.의35-52-29-880)는 곡률반경이 998.8 mm이고, 2400 grooves/mm의 격자(groove)밀도를 가진다. 이 단색기의 스펙트럼 측정장치로는 폭 24.8  $\mu\text{m}$ 의 1024 픽셀(pixel)이 1차원으로 배치된 다채널 광검출기(OMA III; EG&G#1461)를 사용하였다. 단색기는 픽셀당 0.01 nm의 파장분해능을 가지며, 격자를 회전시켜 측정가능한 파장대역은 430 nm에서 492 nm까지이다. 측정효율을 높이기 위하여 입구 슬릿과 격자사이에 초점거리 150 mm인 실린더형 볼록렌즈를 설치하였다.

### 3-3. CARS 신호 측정 및 분석 프로그램

CARS신호로부터 측정대상 매질의 온도를 알아 내려면, 먼저 식(5)로 표현되는 CARS 신호의 스펙트럼 모양을 이론적으로 계산하여 실제 측정된 CARS신호 스펙트럼과 비교해야 하는데 그 과정을 자세히 적어보면 다음과 같다. 먼저 측정 대상 분자의 3차 비선형 감수율을 라만 진동수에 따라 계산한다. 둘째로 온도에 따라 계산해야 하는 분자의 진동 및 회전 에너지 준위를 결정한다. 셋째로 분자 상수로부터 모든 에너지 준위에 따른 각 준위분포를 계산하고 CARS신호 발생이 가능한 모든 천이에서의 3차 비선형 감수율을 계산한다. 넷째로 단색기를 포함한 다채널 광검출기의 분광특성을 의

미하는 슬릿함수와 펌프광의 선폭을 앞에서 계산한 3차 비선형감수율에 콘볼루션 적분하면 이론적으로 계산한 CARS신호를 얻을 수 있다. 측정된 CARS 신호 스펙트럼을 비공명 신호로 규격화하여 이론적으로 계산한 CARS 스펙트럼과 곡선 맞춤과정을 거치면 측정대상 매질의 온도를 알 수 있다. 위와같은 과정을 이용하여 CARS신호 측정후 온도를 알기 위해서는 매우 긴 계산시간이 필요하나, 본장치의 측정 프로그램에서는 Hall 등<sup>(5)</sup>이 제안한 온도 라이브러리를 이용한 방법을 사용하여, 50 K 간격으로 미리 계산한 이론적인 CARS 스펙트럼과 CARS 신호 측정에서 얻은 스펙트럼을 곡선맞춤하여 측정온도를 1초 이내 알 수 있도록 하였다. CARS신호의 이론 스펙트럼의 온도 라이브러리의 계산에는 PC용 CARSFIT(version 03-30-92, Sandia National Lab. USA)을 이용하였다. CARS 측정 및 곡선 맞춤 프로그램은 마이크로 소프트사의 Visual Basic 3.0을 이용하여 작성하여 Window 3.1 이상의 환경에서 작동될 수 있도록 하였다. 이 프로그램은 CARS측정 실험을 직접 제어하여 다채널 광검출기로부터 신호를 측정 및 저장하고, 미리 입력해놓은 라이브러리와 비교하여 온도를 바로 구해볼 수 있다.

### 4. 광대역 CARS장치 성능검사

광대역 CARS장치의 온도측정의 정확도에 영향을 주는 요인들은 여러 가지가 있는데, 그 요인들은 크게 세가지로 분류할 수 있다. 첫째는 CARS분광기에 사용한 레이저나 측정기기의 불안정성에 기인하는 것으로, 사용한 펌프레이저의 세기요동이나 색소레이저의 출력스펙트럼 변화, 사용한 다채널 광검출기의 잔상 등이 그것이다. 이중에 색소레이저의 출력스펙트럼의 변화는 여러 문헌에서 언급되고 있으며, 광대역 CARS 장치의 온도 측정정확도와 안정도에 큰영향을 준다. <sup>(15)(17)(18)(19)</sup> 광대역 CARS신호의 측정과정에서 사용한 색소레이저의 세기분포를 측정하기 위하여 측정 대상의 매질과 라만 고유진동수가 다른 매질로 비공명신호를 미리 측정하여, CARS신호 측정 후에 신호규격화에 사용한다. 만일 색소레이저출력의 세기분포의 변화가 심한 레이저를 사용하는 경우에는 측정할 때마다

비공명신호를 같이 측정하든지, 색소 레이저에 출력 안정화 장치를 추가하여 사용해야 하는 불편함이 있다. 둘째는 이론적인 CARS스펙트럼을 계산하는 방법과 측정신호 스펙트럼과 비교하는 곡선맞춤 과정에서 생긴다. CARS 신호 모양을 이론적으로 예측하는 부분과 곡선 맞춤과정에서 발생하는 오차는 여러 문헌에 잘 설명되어 있다.<sup>(2)(20)(21)</sup> 셋째는 CARS신호가 생기는 측정대상 매질의 부분적인 온도차이 등에 기인하는 것으로 고온부분과 저온부분이 섞여 있는 난류화염 측정에서 특히 중요하게 고려해야 한다. 본 연구에서는 제작된 무모드레이저의 동작 특성과 함께 1000 K에서 2400 K까지의 고온영역에서 CARS 온도측정의 정확도와 색소레이저의 출력 파장의 스펙트럼의 변화에 따른 장치의 온도측정의 안정도를 실험적으로 측정하였다. 또한 평면화염의 연소상태의 온도를 측정하여 프로판 공기 예혼합 화염에서의 온도 분포를 알아 보았다.

4-1. 무모드레이저의 제작과 특성조사

무모드 색소레이저의 동작 특성을 실험적인 방법으로 측정하였다. 색소 용액의 온도 변화에 따라서 증폭 자발 방출의 스펙트럼 분포가 변하는 것을 피하기 위하여 색소용액의 온도를 0.1 °C이내에서 조절되도록 냉각하였다. 색소는 키톤레드620(Kiton Red 620)을 주로 사용하였으며, 발생하는 증폭 자발 방출의 파장을 바꾸기 위하여 로다마인 640(Rodamine640)을 혼합하여 실험하였다. 색소 용액의 온도 변화에 따른 증폭 자발 방출의 출력 변화를 측정된 결과 온도가 10 °C에서 25 °C까지 변할 때 출력이 약 ±10 % 정도 변화하였으며, 온도가 18 - 22 °C 이내에서 최대 값을 나타냈다. 따라서 다음에 기술하는 모든 실험에서는 색소 용액의 온도는 20 °C로 고정하였다. 색소의 용매는 고순도 메탄올을 사용하였다. 색소 KR620의 농도를 바꾸어 가면서 증폭 자발 방출의 출력에너지와 그 때의 출력스펙트럼의 중심파장을 구한 것이 Fig. 4이다. 실험에서 사용한 펌프광원인 Nd:YAG 레이저의 이차고조파 에너지는 펄스당 약 125 mJ이었으며, 색소의 농도는  $2 \times 10^{-4}$  M까지 변화시켰다. 증폭 자발 방출의 출력에너지는 최대 7.1 mJ로 이때 에너지

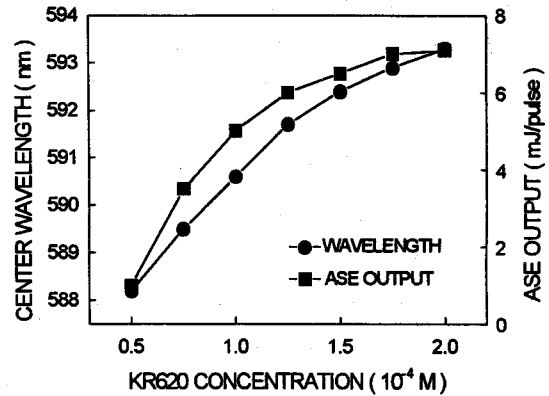


Fig. 4. Output energy and center wavelength of the ASE measured as a function of the concentration of KR620 dye solution.

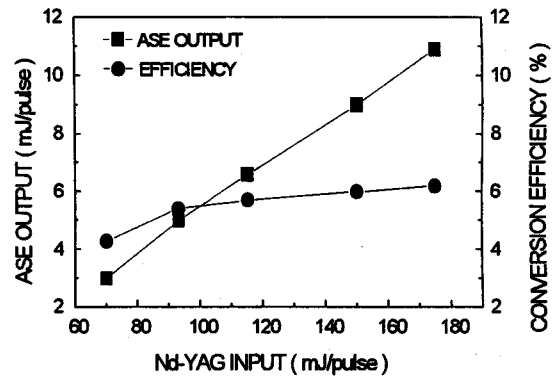


Fig. 5. Output energy of the ASE and energy conversion efficiency measured as a function of the pump beam energy.

효율은 약 6 % 였다. 증폭 자발 방출의 출력에너지는 색소의 농도가 증가함에 따라 선형적으로 증가하는 모습을 보여주고 있다. 그러나 색소의 농도가 높아질 경우 펌프광원이 색소셀의 반응 매질 내부에 충분히 이르지 못하여, 출력 광의 세기가 공간적으로 도넛형을 가지게 되어 불균일한 분포를 나타낸다. 그래서 KR620을 사용할 경우 색소농도는 주로  $1.5 \times 10^{-4}$  M로 고정하였다. Fig. 5는 펌프광원의 출력에너지를 변화시키면서 증폭 자발 방출의 출력 에너지의 변화를 관찰한 결과이다. 펌프광원의 출력에너지가 증가함에 따라 증폭 자발 방출의 출력에너지가 선형적으로 증가함을 볼 수 있다. 그

러나, 에너지 효율은 앞부분에서는 약간씩 증가하다가 펌프광의 에너지가 약 100 mJ/p 이상에서는 펌프광의 에너지에 관계 없이 대략 6 % 값을 가지며, 이 무모드 레이저의 효율이 충분히 높아진 상태임을 의미한다.

무모드 레이저의 파장을 조정하는 방법으로는 수동적인 방법과 능동적인 방법 두가지가 있다. 수동적인 방법이란 색소의 농도나 온도 등 반응 매질의 물리화학적 상태를 바꾸어서 색소에서 발생하는 증폭 자발 방출의 특성을 바꾸는 것을 말한다. 이 경우 색소의 여러가지 실험조건에 대한 장치특성을 미리 측정해 두어야하는 번거로움이 있다. 이와는 달리 능동적인 방법이란 색소에서 발생하여 증폭되는 증폭 자발 방출의 파장을 선택하는 광소자를 사용하여 조정하는 방법을 말한다. 이때 많이 사용되는 것으로 분산 광학 소자인 회절격자나 프리즘, 그리고 특정한 파장의 광만을 선택적으로 투과시키는 간섭필터 등이 있다. 여기서 능동적인 방법을 사용할 경우 파장을 쉽게 조정할 수 있지만 증폭 자발 방출의 선폭이 줄어들어서 고온의 기체 온도를 측정할 때 사용하기 힘든 경우가 있다. 수동적인 방법에 의한 증폭 자발 방출 파장 가변도를 조사하기 위하여, KR620 색소농도를 바꾸어 가면서 출력되는 증폭 자발 방출의 분광분포를 다채널 광측정기 (optical multichannel analyzer ; Princeton Instrument EIRY1024)로 측정하여 중심 파장의 변화를 관찰한 결과가 Fig. 4에 나타나 있다. 측정된 색소레이저의 분광분포는 대략 반치폭이 3.5 nm 로 평탄한 가우스 함수 모양을 가지고 있었다. 중심파장은 KR620 색소의 농도가 높아짐에 따라 장파장 쪽으로 변화하는 것을 볼 수 있으며, 색소의 농도를  $2 \times 10^{-4}$  M 까지 변화시켰을 때 약 5.0 nm( $140 \text{ cm}^{-1}$ ) 정도의 파장 변화가 측정되었다. Fig. 4에서 본 바와 같이 색소의 농도 변화에 따른 증폭 자발 방출 광의 파장조정방법은 첫째 조정하는 파장의 폭이 매우 제한적이고, 색소농도가 낮은 영역에서는 출력에너지가 급격히 낮아지는 문제점을 가지고 있다. 이러한 문제를 피하기 위하여 광대역 CARS 실험에서는 다른 색소를 조합하여 사용하는 경우가 있다. 질소의 CARS 실험에 필요한 파장인 607 nm 근처의 스톱스 광을 발생시키기

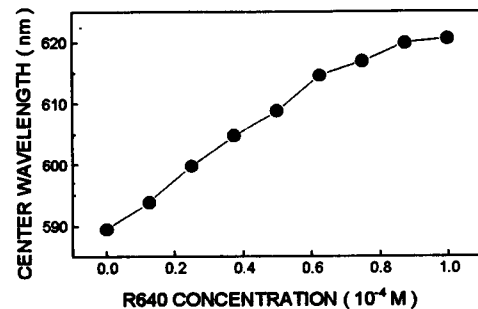


Fig. 6. Center wavelength variation obtained by adding R640 dye in a base solution of  $7.5 \times 10^{-4}$  M KR620 dye.

위하여 주로 사용하는 KR620과 R640 혼합용액의  $1.0 \times 10^{-4}$  M 까지 변화시켰다. Fig. 6에 나타난 농도변화에 따른 파장변화를 측정된 결과가 Fig. 6이다. 실험에서는 농도가  $7.5 \times 10^{-5}$  M인 KR620 색소 용액에 R640 색소를 첨가하여 R640의 농도를 결과를 보면, R640의 농도가 높아짐에 따라 증폭 자발 방출의 중심파장이 급격히 장파장 쪽으로 변화하는 것을 볼 수 있으며, 파장의 변화 폭은 약  $30 \text{ nm} (850 \text{ cm}^{-1})$ 로 매우 크다.

능동적으로 파장을 조정하기 위하여 본 실험에서는 투과폭이 좁은 간섭필터(Oriel interference filter 53920)와 회절격자(1800 groove/mm)를 사용하였다. 먼저 간섭필터를 사용하여 증폭 자발 방출의 중심파장을 변화시키기 위하여 거울과 첫번째 색소셀 사이에 필터를 설치하였다. 무모드 레이저 광의 진행방향에 대하여 필터의 각도를 변화시키면, 필터의 투과곡선이 바뀌게 되어 무모드 레이저의 중심파장이 변하게 된다. 발생된 증폭 자발 방출 광의 반치폭(FWHM)은 약 2 nm로 필터를 사용하지 않을 경우에 비하여 약 40 - 50 % 정도 감소하고, 출력에너지의 효율은 약 15 %로 15 - 20 % 정도 감소하였다. 필터를 사용하여 조정할 수 있는 파장의 범위는 약 7.1 nm 이었으며 회절격자를 파장 선택 소자로 사용하여 증폭 자발 방출 파장을 조정된 실험결과 중심파장이 10 nm 변화하는 것을 관찰하였다. 회절격자를 사용하여 증폭 자발 방출 파장을 조정할 경우 회절격자에서 반사된 각도에



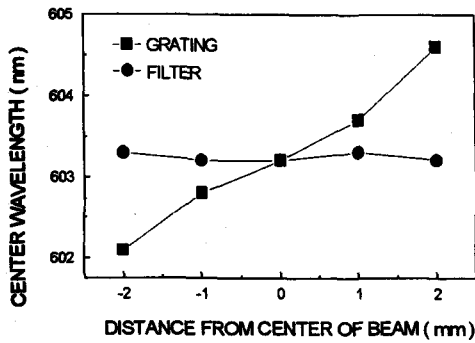


Fig. 7. Spatial variation of the center wavelength of ASE measured at five different locations of the beam.

따라 다른 파장의 빛이 회절되므로 출력되는 증폭 자발 방출이 공간적으로(spatially) 다른 분광분포를 가질 것이라는 것을 쉽게 예상할 수 있다. 이와 같이 공간적으로 다른 분광분포를 가진 광을 광대역 CARS의 스투스광으로 사용할 경우 CARS 분광선의 모양에 변형을 주게되어 측정의 정확도가 낮아질 가능성이 있다. 무모드 레이저에서 출력된 광을 공간적으로 한 부분만을 선택하여 다채널 광검출기로 입사시키고 분광분포를 측정하였다. 출력된 증폭 자발 방출 광의 직경이 약 5 mm인데, beam의 중심을 기준으로 중심,  $\pm 1.5$  mm, 3 지점에서 분광분포를 측정하고, 중심파장을 구하였다. 파장 선택 소자로 회절격자와 간섭필터를 사용하여 발생된 증폭 자발 방출의 분광분포의 공간변화를 측정 비교한 결과가 각각 Fig. 7에 나타나 있다. 측정된 지점에서 증폭 자발 방출 광의 중심파장의 변화량은 회절격자를 사용하였을 때 약 2 nm로 큰 값을 가는데 반하여 간섭필터를 사용하였을 때는 약 0.2 nm로 그 값이 매우 작았다. 따라서 투과폭이 좁은 간섭필터를 사용하여 색소레이저의 파장을 변화시키는 것이 훨씬 유리함을 알 수 있다.

4-2. 광대역 CARS 의 온도 측정 정확도.

국제 온도눈금(ITS-90)에 따르면 967.78 C 이상의 온도에서는 복사온도계가 표준측정장치이다. 따라서 광대역 CARS 분광기의 고온영역의 온도 측정 정확도를 확인하기 위해서는 고온가스의 온도를 균일하게 일정하게 유지하고, 가스의 온도를 정

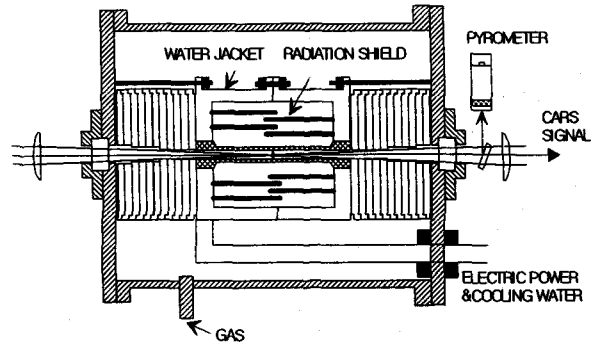


Fig. 8. Schematic diagram of the high temperature blackbody furnace.

확하게 복사온도계로 측정하여 비교 할 수 있는 전기로가 필요하다. 1000 K 이상의 고온, 고압의 CARS 신호를 측정하기 위해서 고온 흑연관 전기로를 제작하였다. Fig. 8은 고온 흑연관 전기로의 일개를 보인 것이다. 고온을 얻기 위하여 발열체로 흑연관을 사용하고 흑연관에 전류를 직접 흘릴 수 있도록 설계하였다. 흑연관의 양단을 잡고 있는 전극에는 냉각수를 흘릴 수 있게 제작하였으며 흑연관의 바깥쪽에는 복사선 차폐판을 몇점 설치하였다. 흑연관 중심벽에는 직경이 1 mm인 구멍이 뚫여 있어 레이저가 흑연관의 중심에서 CARS신호를 발생하도록 제작하였으며, 양쪽은 석영 유리창으로 막혀있다. 흑연관을 감압비가 25:1인 10 kW의 트랜스를 사용하여 가열하였다. 전기로의 온도를 측정하기 위하여 측정시각이 짧은 복사온도계를 제작하여, 표준 복사 온도계와 1000K에서 2500K 까지 비교 교정하여 사용하였다. 교정된 복사온도계의 정확도는 이 온도영역에서 0.25 % 이내이다. 복사 온도계에는 펌프레이저와 스투스레이저에서 오는 산란광을 막고, 복사온도계의 광검출기의 감응도가 높은 영역만을 투과시키는 장파장의 투과필터와 투과 중심파장이 850 nm인 간섭필터를 설치하였다.

CARS 온도의 정확도를 확인하기 위하여 흑연관 전기로를 원하는 온도가 유지되도록 조정후 CARS 신호를 50회 누적하여 5번 측정하였다. 비공명신호는 실험전에 1.5 기압의 프로판 가스셀에서 측정하였으며 암신호는 측정전후에 스투스레이저를 가리면서 측정하여 앞장의 곡선맞춤프로그램을 이

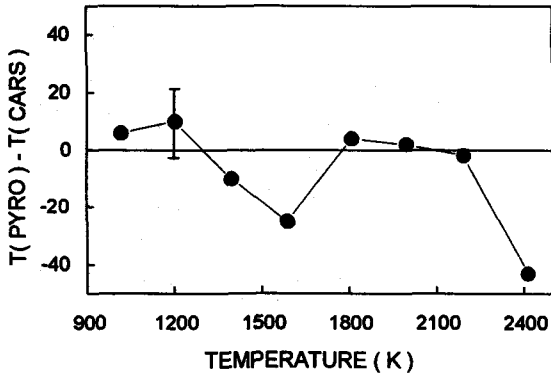


Fig. 9. Measured temperature difference between the CARS temperature and the radiation temperature.

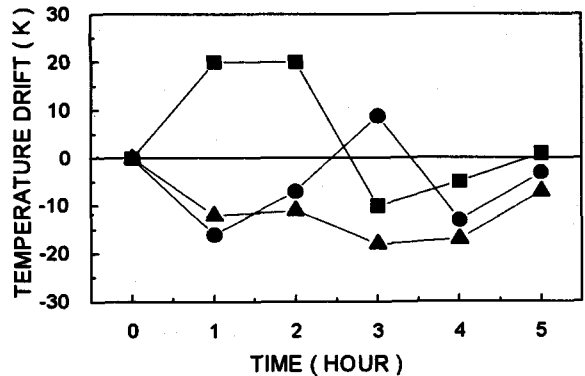


Fig. 10. CARS temperature drift at 1500 K due to the variation of the spectral distribution of the modeless dye laser.

용하여 최적맞춤 온도를 구하였다. Fig. 9은 복사온도계에서 측정된 온도를 기준온도로 볼 때 CARS 측정온도의 오차를 보인 것이다. 표시된 에러범위는 5번 측정된 값의 표준편차이다. 실험에서 사용한 복사온도계의 측정정확도(0.25 %이내)와, 전기로의 안정도(0.2%이내)를 고려하면, 그림에 표시된 오차는 대부분이 CARS의 온도측정 오차로 볼 수 있다. 1000 K에서 2400 K 까지 최대 2 %의 온도 측정 오차가 있었다. 이결과는 광대역 CARS 장치의 온도측정 정확도를 측정된 다른연구자의 결과와 비슷하거나 좋은 결과이다.<sup>(16)(18)(21)</sup>

4-3. 무모드레이저의 안정도 측정

시간에 따른 스톡스레이저 출력 스펙트럼의 변화는 광대역 CARS장치의 온도 측정의 정확도에 많은 영향을 준다. 스톡스레이저 출력 스펙트럼의 변화가 광대역 CARS 분광기의 온도 측정에 미치는 영향을 알아 보기 위하여 5 시간 동안 비공명신호를 1 시간 간격으로 측정하였다. 측정 후 CARS신호를 분석하는 프로그램을 이용하여 1500 K에서의 이론적으로 계산한 CARS신호를 만들고, 만든 신호를 처음 측정된 비공명 신호로 나누어서 1500 K의 기준 CARS신호가 실제로 분광기로 측정된 신호와 동일하게 만들었다. 이 기준신호를 측정 프로그램으로 다시 읽어드린 후 이후에 측정된 비공명신호로 규격화 하면서 최적맞춤온도를 구하면 스톡스레이저의 변화에 의한 CARS 온도 측정오차를 알 수 있다. 처음에 측정된 비공명신호로 규격화하

여 얻은 온도는 1500 K에서 2 K이내였다. 5 시간 동안 3 번 측정된 결과가 Fig. 10에 있다. 결과에 따르면 측정 시간 동안 에 20 K이내의 온도 측정 오차가 스톡스레이저의 출력 스펙트럼 변화 때문에 발생하였다. 이 결과는 이전에 측정된 결과에 비해 대폭 향상된 결과인데,<sup>(6)(20)</sup> 광대역 CARS분광기에 사용한 무모드레이저의 구조가 간단하여 출력광의 세기가 공간적으로 균일하고, 분산광학 소자를 사용하지 않아 출력파장의 변화가능성을 줄였기 때문으로 판단된다.

4-4. 평면 화염의 프로판 연소온도 측정.

평면 층류화염을 만들기 위해 상용으로 구매가 가능한 메케나 버너(Kaskan Type, McKenna Products)를 사용하였다. 메케나 버너는 화염이 다공성 표면에 평면화염을 형성하므로 화염후류에 비교적 균일한 온도가 넓은 영역에 걸쳐 유지된다. 또한 연소상태가 시간적 공간적으로 안정적인 것으로 알려져 있어 레이저를 이용한 연소진단용 장치들의 표준 검정용으로 사용하려는 시도가 있다.<sup>(22)</sup> 이 버너의 외관은 스테인리스 스틸로 제작되어 있으며, 안쪽에는 직경 60 mm의 구리 입자 (95 %구리, 5 % 주석)를 소결 (sintering)시킨 다공성 원판과 이를 둘러싸고 있는 직경 100 mm의 동일한 재료로 이루어진 다공성 판으로 구성되어 있다. 안쪽의 다공성 원판의 내부에는 냉각수가 코일형태로 튜브로 흐르게 되어 있다. 안쪽의 다공성 판에 공기와 프로판을 예혼합하여 주입하여 연소시키면 화

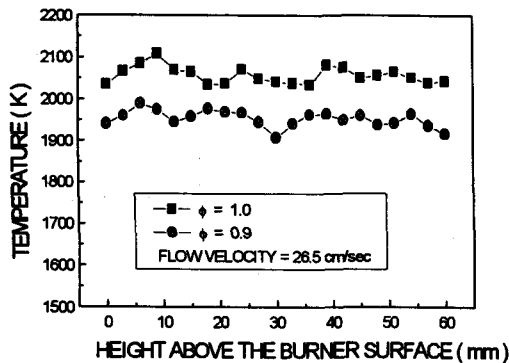


Fig. 11. Measured temperature distributions for several stoichiometric ratios of propane air mixture.

염은 버너의 표면 바로 위 (2 mm)에 평면화염을 형성한다. 프로판의 유량은 질량유량계 (mass flowmeter, MKS)을 이용하여 조절하였으며 공기는 자체 제작한 소닉유량계(sonic flowmeter)로 조절하였다. 실험에 사용된 모든 유량계는 습가스테스터기(wet gas test meter)로 교정하였다. 평균유속 24.6 cm/s, 당량비 0.9, 1.0인 프로판 공기 예혼합 화염의 공간적인 온도분포 측정결과가 Fig. 11에 있다. 측정 결과에 의하면 주어진 유속과 당량비에서 비교적 균일한 온도분포를 유지함을 알 수 있으며, 후류로 갈수록 버너 표면근처에 비하여 온도가 조금씩 감소하고 있다.

## 5. 결론

연소상태의 온도를 측정할 수 있는 이동형 광대역 코헤런트 반스톱스 라만 분광기를 제작하였다. CARS 분광기의 펌프레이저로는 Nd-YAG레이저의 이차 고조파를 사용하였고, 온도 측정 정확도를 향상시키기 위하여 무모드 레이저를 제작하여 스톱스광으로 사용하였으며 무모드 레이저의 출력 특성을 측정하였다. 이동형 CARS 분광기에 적합하도록 CARS 신호 측정용 단색기를 제작하여 분광기 내부에 설치하였다. CARS 분광기용 프로그램은 측정 실험을 직접 제어하여 다채널 광검출기로부터 CARS 신호를 측정 및 저장하고, 온도를 바로 얻을 수 있도록 작성하였다. CARS 분광기의 온도 측정의 정확도를 알아 보려고 흑연관 전기로를 이용하

여 복사온도계와 CARS 분광기로 측정한 온도의 차이를 측정했는데, 1000 K - 2400 K 사이의 온도 영역에서 2 % 이내에서 일치하는 결과를 얻었다. 시간에 따라 변하는 무모드 색소레이저의 출력 스펙트럼을 측정하여 온도측정에 미치는 영향을 조사해 본 결과 1500 K에서 5 시간 동안 1.5 %의 안정도를 보였다. 이 장치의 연소진단에 응용할 수 있는 가능성은 보기 위하여 메케나 버너를 이용하여 프로판 평면 화염 내부에서의 온도 분포를 측정하였다. 화염내부에서 온도 분포가 균일하였으며, 후류로 가면서 온도가 낮아 지는 경향을 측정하였다. 이상의 결과로부터 이 분광기는 여러 형태의 연소진단에 유용하게 쓰일 것으로 기대된다.

## 후기

본연구내용은 1994/1995년 공업기반기술사업의 연구비 지원을 받았으며 과제 수행에 많은 도움을 준 서울대학교 연소 실험실의 정석호교수, 김용석씨와 과제에 같이 참여한 개풍광학의 임직원 여러분께 감사드립니다.

## 참고문헌

- (1) S. A. J. Druet and J. P. E. Taran, "CARS spectroscopy," Prog. Quant. Electro. Vol. 7, 1-72(1981)
- (2) A. C. Eckbreth, "Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species," Abacus Press, Prunbridge Wells (1988) Chapter6
- (3) A. C. Eckbreth, "BOXCARS: Cross-beam phase-matched CARS generation in gases," Appl. Phys. Lett. Vol. 32, 421-423 (1978)
- (4) G. L. Switzer, L. P. Goss, and D. D. Trump, "CARS Measurements in the Near-Wake Region of an Axisymmetric Bluff-Body Combustor," AIAA J., Vol. 24, 1155-1162(1986)
- (5) R. J. Hall, L. R. Boedeker, "CARS thermometry in fuel-rich zones," Appl. Optics, Vol. 23, 1340-1346(1984)
- (6) M. Woyde and W. Stricker, "The Application of CARS for Temperature Measurements in High

- Pressure Combustion Systems," *Rev.Sci.Instrum.*, Vol. 50, 519-525(1990)
- (7) A. C. Eckbreth, Gregory M. Dobbs, John H. Stufflebeam, and Peter A. Tellex "CARS temperature and species measurements in augmented jet engine exhausts," *Appl.Opt.*, Vol. 23, 1328-1338(1984)
- (8) K.Kajiyama, K.Saito, K.Usuada, S.S.Kano, and S.Maeda "CARS Study of  $\text{SiH}_4\text{-NH}_3$  Reaction Process in Glow Discharge Plasma," *J.Appl.Phys.B.*, Vol. 38, 139-142(1985)
- (9) R.P. Lucht, R.E. Teets, R.M. Green, R.E. Palmer, and C.R. Ferguson, "Unburned gas temperature in an internal combustion engine. I:CARS temperature measurements", *Combust. Sci. and Tech.*, Vol. 55, 41-61(1987)
- (10) T. Nakada, T. Itoh, and Y. Takagi, "Unburnt gas temperature measurement using single shot CARS in a spark ignition engine," *International Symposium COMODIA 90*, 393-398(1990)
- (11) G.T. Kalghatgi, P. Snowdon, and C.R. McDonald, "Studies of knock in a spark ignition engine with "CARS" temperature measurements and using different fuels", *SAE paper 950690* (1995)
- (12) V.Bergmann, W. Stricker, " $\text{H}_2$  CARS thermometry in fuel rich, premixed, Laminar  $\text{CH}_4$ /air flame in the pressure range between 5 and 40 bar" *Appl. Phys. B.* Vol. 61. 49-57 (1995)
- (13) T. J. Anderson, G.M. Dobbs, and A.C. Eckbreth, "Mobile CARS instrument for combustion and plasma diagnostics," *Appl. Opt.* Vol. 25, 4076-4085 (1986)
- (14) P. Snowdon, S.M. Skippon, and P. Ewart, "Improved precision of single-shot temperature measurements by broadband CARS by use of a modeless laser," *Appl. Opt.* 30, 1008-1010 (1991)
- (15) D.R. Snelling, R.A. Sawchuk, and G.J. Smallwood, "An improved CARS spectrometer for single shot measurements in turbulent combustion," *Rev. Sci. Instrum.* 63, 5556-5564 (1992)
- (16) 박승남, 한재원, 이은성, 이충희 "광대역 CARS 분광기의 제작과 온도 측정의 정확도 분석" *한국광학회지*, 제4권, 제2호, 226-232 (1993)
- (17) W. Meier, I. Plath, and W. Stricker, "The application of single-pulse CARS for temperature measurements in a turbulent stagnation flame," *Appl. Phys. B.* Vol. 53, 339-346 (1991)
- (18) M. Pealat, P. Bouchardy, M. Lefevre, and J.P. Taran, "Precision of multiplex CARS temperature measurements," *Appl. Opt.* Vol. 24, 1012-1022 (1985)
- (19) D.R. Snelling, G.J. Smallwood, R. A. Sawchuk, and T. Paramesaran, "Precision of multiplex CARS temperatures using both single-mode and multimode pump lasers," *Appl. Opt.* Vol. 26, 99-110 (1987)
- (20) S. Kroll and D. Sandell, "Influence of laser-mode statistics on noise in nonlinear optical processes - application to single-shot broadband coherent anti-Stokes Raman scattering thermometry," *J. Opt. Soc. Am.* B5, 1910-1925 (1988)
- (21) B.Lange, M.Noda, and G.Marowsky, "High-speed  $\text{N}_2$ -CARS thermometry," *Appl. Phys. B49*, Vol.33, 33-38 (1989)
- (22) S. Prucker, W. Meier, and W. Stricker, A flat flame burner as calibration source for combustion research : Temperature and species concentrations of premixed  $\text{H}_2$ /air flames, *Rev. Sci. Instrum.* Vol. 65, 2908-2911 (1994)