

순간 온도 측정을 위한 CARS 분광기의 정밀 정확도 분석

박승남 · 박철웅 · 한재원

한국표준과학연구원 양자연구부

길용석 · 정석호

서울대학교 기계공학과

(1996년 9월 5일 받음)

기체의 순간 온도를 측정할 수 있는 펄스 레이저를 사용한 이동형 CARS 분광기를 제작하였다. 이 분광기의 측정 프로그램은 측정할 스펙트럼으로 부터 온도를 얻기 위하여 8가지의 빠른 온도 계산법과 최소제곱법을 포함하고 있다. 빠른 온도 계산법 중 두 가지는 최소제곱법 보다 계산 시간은 훨씬 덜 걸리면서 온도의 분산이 작은 측정 결과를 준다. CARS 온도의 정밀 정확도는 복사온도계를 기준으로 흑연관 흑체로에서 측정하였다. 1000 K 부터 2400 K 의 온도 영역에서 정확도는 $\pm 2\%$ 이내이고, 정밀도는 가장 정밀한 결과를 주는 빠른 온도 계산법을 적용할 때 1600 K에서 ± 35 K이다. 순간 온도 측정의 적용 예를 보이기 위하여 이 분광기를 정해진 조건에 있는 난류 연소의 측정에 적용하였다.

I. 서 론

CARS(coherent anti-Stokes Raman scattering)는 연소나 반응 상태에 있는 기체에 간섭을 주지 않고 온도를 측정하는 가장 정확한 방법이며, 수% 이상 존재하는 기체의 농도를 측정할 수도 있으므로 내연기관^[12], 확산 화염^[3,4], 전기로^[5,6], 펄스 엔진의 배출구^[7], 석탄 발화 분위기^[8,9]의 가스 온도와 농도 측정에 사용된다. 미량 농도를 측정할 수 있는 레이저 유도 형광법과 함께 연소나 반응 진단의 필수적인 레이저 응용 기술이다.

CARS는 펄스 레이저를 사용하기 때문에 레이저 빛이 지속되는 동안에 순간적으로 일어나는 현상을 측정할 수 있는 장점 때문에 그 응용 범위가 넓어지고 있다. 이런 CARS의 장점은 Stenhouse^[1] 등이 내연 기관의 진단에 응용하면서 부각되기 시작하였다. 내연기관은 밀폐된 실린더 내부에서 매우 빠른 속도로 압축과 연소가 반복적으로 일어나는 특수한 연소 장치로 일반적인 측정기로 내부의 온도, 압력, 기체의 조성 변화를 측정하기가 거의 불가능하다. 내연기관에서 일어나는 노킹 현상은 미연 가스의 온도와 노킹에 영향을 주는 압축비 등의 관계로부터 이해할 수 있다. 그러나, 노킹은 매우 복잡한 현상이고 엔진 사이클에 따라 강도가 달라지기 때문에 CARS와 같이 공간 시간적으로 분해능이 좋은 온도 측정 방법이 필요하게 되었다.^[10,11]

최근에는 펄스 마다 측정된 온도의 확률 분포를 측정하여 난류 연소를 진단하는 기술이 개발되어 CARS의 응용 범위가 넓어지고 있다.^[12-15] 또한 펄스 레이저에 의한 분자의 광분해 과정이나 초음속 분자빔의 에너지 이완의 동력학을 연구하는데도 CARS가 응용되고 있다.^[16,17] CARS 분광기를 이용하여 순간 현상을 연구하기 위해서는 CARS 분광기가 가지고 있는 고유한 정밀 정확도의 특성을 측정하여야 하며, 이런 데이터를 기본으로 측정된 현상을 분석할 수 있다. 이 논문에서는 CARS의 측정 원리를 간단히 기술하고 이 원리에 따라 순간 온도를 측정할 수 있는 CARS 분광기를 제작하였다. CARS 분광기로 얻은 스펙트럼으로 부터 온도를 계산하기 위하여 곡선마춤하는 방법과 온도 민감 변수를 사용하는 방법을 모두 포함한 프로그램을 개발하였다. 실제로 일정한 온도를 유지하고 있는 전기로에서 스펙트럼을 측정 후 정상 상태의 온도 측정 정확도를 분석하였고, 몇 온도에서 순간 스펙트럼을 측정하였다. 얻어진 순간 스펙트럼을 여러 가지 온도 민감 변수를 사용하는 방법들과 최소제곱법에 의한 곡선마춤 방법으로 분석한 후 이 방법들의 장단점을 비교하여 논의하였으며 순간 온도 측정의 정밀도에 대해서도 검토하였다. 실제로 급격히 온도가 변하는 난류 연소 상태에서 순간 온도의 분포 함수를 측정하여 난류 연소를 진단할 수 있는 가능성을 제시하였다.

II. CARS의 온도 측정 원리

CARS 신호의 세기는 펌프광의 세기 I_1 , 스톱스 광의 세기, I_2 , 3차 비선형 감수율 $\chi^{(3)}$ 로 다음과 같이 표현된다.

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

여기서 ω_1 , ω_2 는 펌프광과 스톱스 광의 각 진동수이다. 일반적으로 3차 비선형 감수율 $\chi^{(3)}$ 은 다음과 같은 식으로 기술할 수 있다.^[18]

$$\chi^{(3)} = i \frac{N}{\hbar} \sum_j \alpha_j \sum_k \alpha_k \Delta \rho_k^{(0)} [G]_{jk}^{-1} \quad (2)$$

$$G_{jk} = i \delta_{jk} (\omega_1 - \omega_2 - \omega_j) + \delta_{jk} (\Gamma_j / 2 - i \Delta_j) + \lambda_{jk} (1 - \delta_{jk}) \quad (3)$$

위 식에서 j , k 는 라만 분광의 천이에 해당하는 양자수, α_j 는 편극율(polarizability), $\Delta \rho_k^{(0)}$ 는 천이 k 에 대한 준위 밀도, δ_{jk} 는 크로니카 델타(Kroneker delta), λ_{jk} 는 선폭 행렬의 비대각 요소, Δ_j 는 선폭 행렬의 허수항에서 결정되는 선폭이, Γ_j 는 독립분광선의 선폭으로 $\Gamma_j = \sum_{i \neq k} \lambda_{ij}$ 로 표현된다. (3)식 오른쪽의 마지막 항인 선폭 행렬의 비대각 요소를 무시할 수 있으면 (2)식은 고립 분광선 모델(isolation line model)인 아래의 식이 된다.

$$\chi^{(3)} = \frac{2N}{\hbar} \sum_j \frac{\alpha_j^2 \Delta \rho_j^{(0)}}{2(\omega_1 - \omega_2 - \omega_j) - i \Gamma_j} + \chi_{NR} \quad (4)$$

여기서 χ_{NR} 은 공명 진동 상태의 분자나 완충 가스 전자의 비선형 편극 때문에 생기는 비공명항으로 파장에 관계 없이 일정하다. λ_{jk} 의 비대각 요소는 충돌에 의한 두 천이 사이의 천이율을 나타내며 이것을 나타내는 식은 눈금 법칙(scaling law)이라는 이름으로 여러 가지가 알려져 있다. (2)와 (3)식에 따라 3차 비선형 감수율을 계산하기 위해서는 눈금법칙에 의해 결정된 (3)식의 복소수 행렬을 수치적으로 대각화해야 한다.

(1) 식으로 표현된 CARS 스펙트럼을 실험에서 사용한 레이저의 선폭을 고려하여 다시 기술하면 레이저의 선폭과 비선형 감수율의 휘감기 적분(convolution)으로 다음과 같이 표현된다.^[19,20]

$$I_3(\omega_3) = \chi_{NR}^2 (1) + 2\chi_{NR} [\text{Re} \chi_R(\omega_3 - \omega_1')] \quad (5)$$

$$+ \frac{1}{2} [|\chi_R(\omega_3 - \omega_1')|^2] + \frac{1}{2} [\chi_R(\omega_3 - \omega_1') \chi_R^*(\omega_3 - \omega_1'')] \quad (6)$$

$$[F(\omega_3)] = \int d\omega_1' I_1(\omega_1') \int d\omega_1'' I_1(\omega_1'') \int d\omega_2 I_2(\omega_2 - \omega_1' - \omega_1'') F(\omega_1', \omega_1'') \quad (6)$$

(5)식의 마지막 항은 펌프광의 선폭 내에서 펌프광의 파장이 다르더라도 같은 파장의 CARS 신호가 생성되어 간섭하는 상호 가간섭(cross coherence)^[21,23] 효과를 기술한 것이다. 만약 펌프 광의 두 광자가 가간섭 거리 이상을 진행한 후 스톱스 레이저와 함께 CARS 신호를 발생시키면 이 항은 (5)의 오른쪽 세번째 항과 일치하며, 휘감기 적분 (6)식은 상호 가간섭을 무시한 Yuratich^[23]의 휘감기 적분과 일치하게 된다.

광대역 CARS의 경우 스톱스 레이저의 분광 분포는 단색화 장치의 분산 능력과 다채널 광검출기의 감응 특성에 의해 결정되는 슬릿함수(slit function)로 대체된다. 더구나 $\Delta \omega_2 \gg \Delta \omega_1$ 이므로 스톱스 레이저의 기여는 휘감기 적분의 밖으로 나올 수 있고, 검출기의 슬릿함수를 고려하면 (6)식의 휘감기 적분은 다음과 같은 더 복잡한 휘감기 적분으로 표현된다.

$$[F(\omega_3)] = \int d\omega_1' T(\omega_3 - \omega_3') I_2(2\omega_1^{(0)} - \omega_3) \int d\Delta' I(\omega_3' - \Delta') \int d\Delta'' I(\omega_3'' - \Delta'') F(\omega_3' - \Delta', \omega_3'' - \Delta'') \quad (7)$$

여기서 $\omega_1^{(0)}$ 는 펌프 레이저의 중심 파장이고 T 는 검출 시스템의 슬릿함수이다. 스톱스광 I_2 의 선폭이 슬릿함수와 $\langle F(\omega_3) \rangle$ 보다 훨씬 넓고 천천히 변하므로 (6)식의 휘감기 적분에서 I_2 는 적분 밖으로 나올 수 있다. 측정된 스펙트럼은 스톱스광의 분포에 의존하기 때문에 이론적으로 계산한 스펙트럼이 실험 조건에 따라 달라지게 된다. 따라서 측정된 스펙트럼에서 스톱스 레이저의 기여를 빼내는 규격화 과정이 필요하다. 이를 위해서 공명선이 CARS 신호를 측정하는 영역과 가까이 있지 않는 기체(기준셀)의 CARS 신호를 측정하고 이것을 (7)식으로 나누어 주면 스톱스 광의 분광분포와 무관한 신호를 얻을 수 있다.

상호 가간섭을 무시하고 비선형 감수율의 분자 당 기여를 $\bar{\chi}_R$, $\bar{\chi}_{NR}$ 로 표시하고, 측정하고 있는 분자의 몰비율을 x 라 하면 다음과 같이 쓸 수 있다.^[4]

$$I_3(\omega_3) = (1) + 2 \left(\frac{x}{\chi_{NR}} \right) [\text{Re} \chi_R(\omega_3 - \omega_1')] + \left(\frac{x}{\chi_{NR}} \right)^2 [|\chi_R(\omega_3 - \omega_1')|^2] \quad (8)$$

일반적으로 분광선의 라만 선폭은 조성에 따라 달라지지만 그 효과는 크지 않다. 특히 측정하고 있는 분자와 충돌하는 분자의 질량이 크게 다른지 않으면 그 효과는

무시할 수 있으므로 CARS 신호는 온도만의 함수로 표현된다. 즉,

$$I_3(\omega_3) = e(\omega_3) + 2Cf(\omega_3, T) + C^2g(\omega_3, T) \quad (9)$$

여기서 $C = x/\bar{\chi}_{NR}$, $f = [\text{Re } \chi_R]$ 이다. 따라서 CARS 스펙트럼은 온도에 무관한 배경 감수율에 대한 측정하고 있는 분자 종의 몰 비와 온도의 함수로 표현된다. 따라서 여러 온도에서 f 와 g 함수를 이론적으로 계산해 놓으면 다른 몰 비에 대한 스펙트럼을 계산할 수 있고, 이미 계산된 f 와 g 를 사용하여 임의 온도에서 f 와 g 를 계산할 수 있다. 이렇게 여러 온도에서 계산된 f 와 g 함수를 라이브러리(library)한다. 이 논문에서는 필요한 질소의 라이브러리는 PC용 CARSFIT(version 03-30-92, Sandia National Laboratory, USA)를 사용하여 200 K에서 부터 2500 K 까지 50 K 간격으로 계산하였다. 이 계산에는 눈금법칙으로 지수함수 에너지 차 모델^[24,25]을 적용하였다. 이 연구의 측정 프로그램에서는 위의 라이브러리를 측정 스펙트럼과 비교하여 곡선추출한 결과로 온도를 알 수 있다.

III. 이동식 CARS 분광기의 제작

제작한 분광기는 그림 1과 같이 광학대 위의 광원부와 발생된 신호를 펌프광의 배경 잡음으로부터 분리해 내는 수광부와 CARS 신호를 분광하는 단색화 장치로 구성되어 있다. CARS 분광기의 광원으로 펌프광과 스톱스 광을 공급하는 두 개의 레이저가 필요하다. 사용한 펌프레이저는 Nd-YAG 레이저(Continuum사 Surelite 2)의 2차 고조파를 사용하였다. 이 레이저는 10 Hz로 작동하며 시간 폭은 7~9 ns이고 출력은 펄스당 최대 250 mJ이다. Nd-YAG 레이저로부터 나온 빛은 2개의 거울을 거친 후 beam splitter에서 세기가 8 : 2의 비율로 갈라진다. 세기의 80%는 무모드 색소 레이저를 펌핑하는데 사용되고, 나머지 20%는 상자형 CARS 위상정합을 위하여 2개의 펌프광을 사용된다. 펌프광은 광분할 장치로 입사하기 전에 색소 레이저의 출력과 시간을 맞추기 위해 2개의 거울을 이용하여 시간지연(약 2 m)을 하였으며 2 배의 갈릴리안 광속 확대기를 역으로 설치하여 펌프 레이저의 직경을 줄여서 스톱스 레이저의 빔 직경과 비슷하게 만들었다. 광분할 장치는 레이저의 높이나 방향은 바뀌지 않고 펌프광을 두 개로 만들 수 있는데, 두 개의 펌프광의 방향, 간격 등의 미세 조정이 가능하다. 광분할기에서 CARS 신호의 상호 가간섭 효과(cross co-

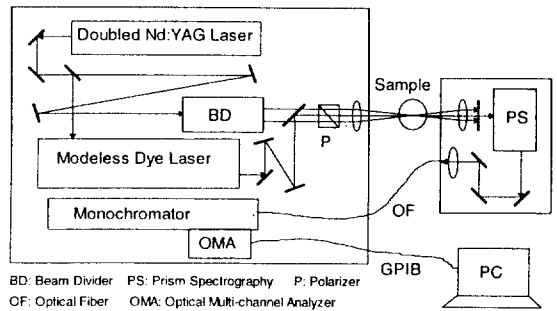


Fig. 1. Optical layout of the mobile CARS spectrometer.

herence effect)를 없애기 두 펌프광에 8 cm의 광로차를 줄 수 있도록 제작하였다. 광분할기에서 나온 2개의 펌프 레이저와 스톱스 레이저와 합쳐지는 부분에는 반달 형태의 색소 레이저용 전 반사 거울을 광분할기 앞에 설치하여 펌프광은 거울이 없는 부분으로 통과하고, 색소 레이저는 반달 모양의 거울에서 반사하여 상자형 CARS 위상 정합(box CARS phase matching)으로 레이저광을 정렬 할 수 있다.

광대역 CARS분광기에서 Nd : YAG 레이저의 이차 고조파(532 nm)를 펌프광으로 질소의 스펙트럼을 측정하려면 607 nm의 파장에서 선폭이 2~3 nm인 스톱스 레이저가 필요하다. 이러한 스톱스 레이저로 다중 모드(multimode)로 동작되는 색소 레이저가 주로 사용되었지만, 최근 Snowdon *et al.*이 증폭자발방출(amplified spontaneous emission; ASE)을 이용한 무모드 레이저 광을 사용하여 레이저의 모드 다짐에 의해 생기는 CARS 신호의 잡음을 크게 줄여 CARS의 온도 측정 정확도와 정밀도를 획기적으로 향상 시키는 결과를 발표하였다.

이 연구에서는 Snowdon^[26]이 제작한 레이저의 광학 정렬이 어려운 단점을 보완하여 다른 구조의 무모드 색소 레이저를 제작하였다. 이 무모드 레이저에 대한 자세한 연구 결과는 다른 논문에 발표될 것이므로 간단히 기술한다. 이 레이저는 광학 정렬을 쉽게 하기 위하여 두 개의 버쉴(Buhtune) 셀을 일직선 위에 배치하고 실린더형 렌즈로 수직 방향에서 펌핑하였다. 첫번째 셀에서 발생되어 양방향으로 진행하는 ASE을 한 쪽에서 거울로 반사시켜 셀을 다시 통과시켜 증폭한 후 두 번째 셀에서 증폭한다. 두 셀 사이에는 빔확대기를 설치하여 증폭셀로 들어가는 빔의 직경이 두번째 셀의 이득 매질 크기와 일치하도록 조절하였다. 증폭 셀의 유리창과 광속 확대기의 렌즈는 모두 같은 방향으로 비스듬히 (8° 정도) 설치하여 공진기가 형성되지 않도록 하였다. 색소의 온

도가 변함에 따라 ASE의 스펙트럼이 변하는 것을 피하기 위하여 색소의 온도를 20°C로 고정하였다. 색소는 Kiton Red 620(KR620)를 주로 사용하였으며, 발생하는 증폭 자발 방출의 파장을 바꾸기 위하여 Rodamine640(R640)을 혼합하여 사용하였다. 실험에서는 농도가 7.5×10^{-5} M인 KR620 색소에 농도가 5×10^{-5} M의 R640 색소를 첨가하면 중심 파장이 607 nm인 스톡스광을 얻을 수 있었다.

상자형 위상 집합으로 발생된 CARS 신호는 펄프광이나 스톡스광과는 다른 방향으로 진행한다. 신호 검출부에 입사한 CARS 신호는 2개의 Pellin-Broca 프리즘으로 구성된 프리즘 분광기에서 펄프광의 배경 잡음이 제거된 후, 이색거울(CARS 신호는 반사하고 펄프와 스톡스 광은 투과시킴)에서 반사된 후 렌즈를 통하여 코아의 직경 200 μm 의 광섬유(Oriel 77530)에 집속된다. 이색 거울과 렌즈 사이에는 펄프광과 스톡스광을 차단하는 필터를 설치하여 신호를 광증배관으로 측정할 때 광증배관의 손상을 방지하였다. 신호 검출부를 통과한 신호는 단색기에서 분광되어 스펙트럼이 된다. 단색기는 이동에 편리하도록 Fig. 1과 같이 광원부가 설치된 광학대의 아래에 설치하였다. 이 연구에서 제작된 단색기는 1개의 오목 회절격자(곡률반경 : 998.8; 2400 grooves/mm; Milton-Roy Ltd., 35-52-29-880)를 사용하여 중심 파장 474 nm의 신호가 다채널 광검출기에서 검출되도록 조정되어 있으며 분해능은 픽셀 당 0.01 nm이다. 이 단색기는 직경 200 μm 의 광섬유를 임구 슬릿으로 사용한다. 다채널 광검출기(OMA III; EG&G #1461)는 폭이 24.8 μm 인 1024개의 픽셀이 1차원으로 배치된 것이다.

IV. 빠른 온도 계산법(Quick Fit Method; QFM)을 포함한 데이터 처리 프로그램

실험으로 측정된 CARS 스펙트럼을 이론적인 스펙트럼과 비교하여 온도를 계산하는 방법에는 몇 가지가 있다. 최소제곱법을 이용하여 실험과 가장 잘 일치하는 이론적인 스펙트럼을 찾아서 온도를 계산하는 방법에는 필요한 온도 마다 이론적인 비선형감수율을 직접 계산하는 방법과 이미 몇 온도에서 계산된 스펙트럼을 내삽하여 임의 온도에서 스펙트럼을 계산하는 방법이 있다. 전자의 방법을 적용하여 최소제곱법으로 곡선마춤할 때 비선형감수율을 계산하는 부분에서 긴 계산 시간을 소요되므로 한 개의 측정 스펙트럼에 대한 계산 시간은 더욱 길어지게 된다. 이 방법은 요즘 가장 빠른 PC를 사용하더라도 1500 K 이상의 스펙트럼을 곡선마춤할 때

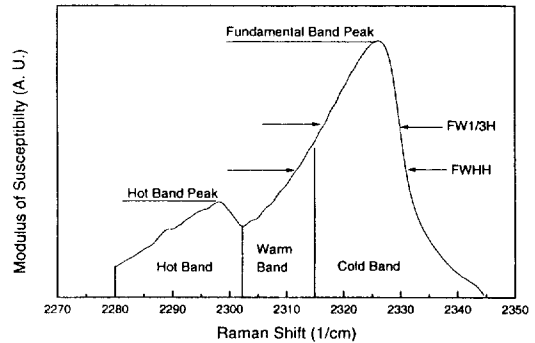


Fig. 2. A typical CARS spectrum for illustration of the quick fit parameters.

약 5분 이상이 소요된다. 이런 단점을 보완하기 위하여 Hall^[4] 등에 의하여 제안된 후자의 라이브러리(library) 방법은 일정한 온도 간격에 따라 이론적인 스펙트럼을 미리 계산해 놓고 간단한 알고리즘으로 중간 온도의 이론적인 스펙트럼을 계산하여 곡선마춤을 한다.

최근 들어서는 CARS가 난류 화염의 진단에 응용되면서 기존의 곡선마춤방법보다 계산시간을 줄일 수 있는 방법이 필요하게 되었다. QFM은 1980년대 컴퓨터의 계산능력이 낮은 때 부터 고안되기 시작되어 최근에는 측정과 동시에 실시간으로 온도를 측정하는 방법으로 주목을 받고 있다. QFM은 온도에 따라 변하는 CARS 스펙트럼의 간단한 특성들을 이용하는 방법이다. 이 특성들은 온도민감변수(quick fit parameter; QFP)라 부르며 주밴드의 선폭이나 주밴드와 뜨거운 밴드 최대값의 비 등 여러 가지를 고려할 수 있다. 이 방법을 Eckbreth^[27] 등이 사용한 이래 여러 연구자들에 의하여 사용되면서 발전하였다. QFM은 계산 시간을 줄일 수 있는 장점 외에도 적당한 알고리즘을 택하면 곡선마춤법에 비하여 측정값의 산란을 줄일 수 있는 장점이 있다. 이 연구에서는 곡선마춤법과 QFM으로 온도를 계산 할 수 있는 프로그램을 개발하였다. Fig. 2는 QFM를 설명하기 위해 그림이고 Table 1은 이 연구에서 사용한 QFM를 정리한 것이다. 광대역 CARS 스펙트럼은 주밴드(fundamental band)와 뜨거운 밴드(hot band)로 이루어지는데 상온에서는 선폭이 좁은 주밴드만이 측정되다 온도가 올라가면 주밴드의 폭이 점점 넓어지고 약 1000 K 이상의 온도에서는 뜨거운 밴드가 나타나기 시작한다. Eckbreth는 주밴드의 찬 밴드(cold band)와 따뜻한 밴드(warm band)로 나누어 온도를 계산할 수 있는 7개의 온도민감변수를 제안하였다. Table 1에서 QFM1부터 QFM7 까지는 Eckbreth가 사용한 온도민감 변수이고 QFM8은 이 연

Table 1. Quick fit methods for extracting temperatures from the CARS spectra

Quick fit method	Quick fit parameter
QFM 1	Full width of 3/4 maximum of fundamental band (FW3/4H)
QFM 2	Full width of half maximum of fundamental band (FWHH)
QFM 3	Full width of 1/4 maximum of fundamental band (FW1/4H)
QFM 4	(Warm area+Cold area)/ Fundamental band peak
QFM 5	Hot band peak/ Fundamental band peak
QFM 6	Warm area/Cold area
QFM 7	Hot area/Cold area
QFM 8	Hot area/(Warm area+Cold area)

구에서 추가로 시도한 방법이다. 방법 1 부터 3은 주밴드의 선폭을 QFP로 사용하는 방법이고 방법 5를 제외한 나머지 방법은 밴드들의 면적을 QFP로 사용하는 방법이다. 방법 5는 찬 밴드와 뜨거운 밴드 최대값의 비를 QFP로 사용한다.

이론적인 광대역 CARS 스펙트럼은 이론적인 질소의 3차 비선형 감수율을 펄프 레이저의 선폭과 광검출계의 슬릿함수를 고려하여 이중 휘감기 적분하여 얻어진다. 이론적인 스펙트럼으로부터 계산한 QFP를 온도에 따라 Fig.3과 Fig.4에 보였다. Fig.3는 선폭을 QFP로 사용하는 방법들의 결과로 온도가 올라가면 뜨거운 밴드와 주 밴드가 겹쳐서 선폭을 계산할 수 없게 되어 측정할 수 있는 온도의 한계가 있다. 또한 단색화 장치의 분해능이 높을 경우나 온도가 높은 경우에는 주 밴드의 왼쪽에서 미세 분광선에 의한 modulation이 발생하여 선폭의 결정이 어렵게 된다. Fig.3에서 하나의 QFP가 여러 개의 기울기를 갖고 증가하는 것은 이런 이유 때문이다. 그러나 Fig.3에서 보는 것 처럼 QFP는 온도에 따라 선형적으로 증가하는 장점이 있다. 이런 이유 때문에 선폭을 QFP로 사용하는 방법은 단색화 장치의 분해능이 낮고 온도가 낮을 때 유용할 것이다.

Fig.4는 밴드의 면적과 밴드의 최대값을 이용하여 QFM를 적용할 때 계산한 QFP를 최대 온도의 값으로 규격화하여 그린 것이다. 이 방법들은 1000 K 이하의 온도에서는 선형성과 분해능이 좋지 못한 것이 흠이다. 실선으로 표시된 방법(QFM4)의 분해능이 제일 나쁘고 진 점선으로 표시된 밴드 최대값의 비를 QFP를 사용하는

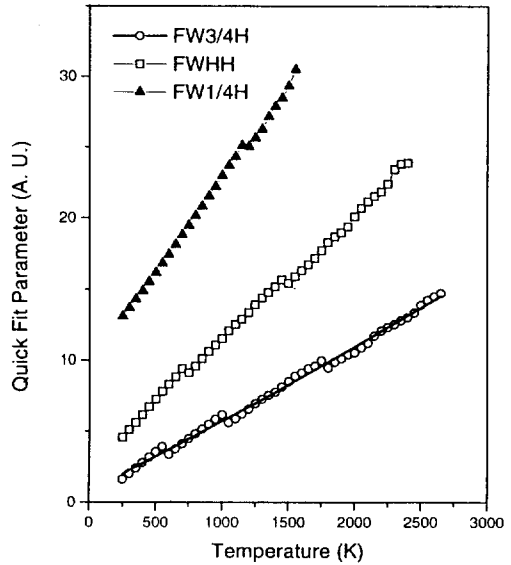


Fig. 3. Quick fit parameters of the spectrometer obtained by the line widths of CARS spectra.

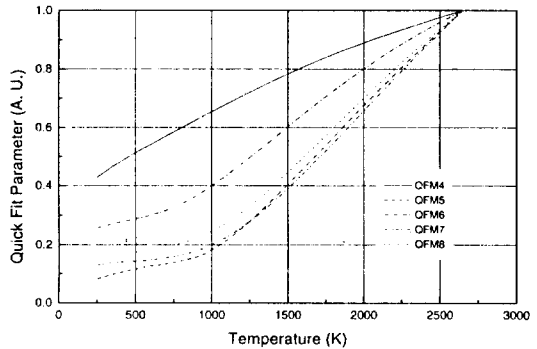


Fig. 4. Quick fit parameters of the spectrometer obtained by the integral of the bands of CARS spectra.

방법(QFM5)이 가장 좋은 분해능을 보여 준다. 그렇지만 QFM5는 최대값의 비를 얻기 위하여 두 픽셀의 측정값만을 사용하게 되므로 밴드의 적분을 사용하는 전자의 방법 보다 잡음에 민감한 것이 결점이다. 분해능, 선형성과 잡음에 대한 내성을 고려할 때 QFM7과 QFM8이 가장 좋은 방법이라고 추측된다.

V. 실험 결과 및 논의

광대역 CARS 분광기의 온도 측정 정확도를 확인하기 위해서는 가스의 온도를 균일하고 일정하게 유지할 수

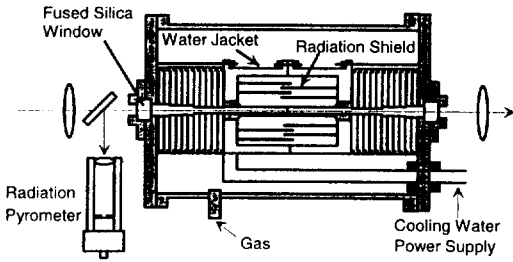


Fig. 5. Graphite tube blackbody furnace for measurement of temperature precision in comparison to the standards radiation pyrometer.

있는 전기로와 온도를 정확하게 측정할 수 복사온도계가 필요하다. 1000 K 이상의 고온, 고압의 CARS 분광을 측정하기 위해서 고온 흑연관 전기로를 제작하였다.^[28] Fig. 5는 고온 흑연관 전기로의 열개와 온도 측정 원리를 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 몇 겹 설치하였다. 발생된 신호가 통과하도록 흑연관 중심 벽에는 직경이 1mm인 구멍을 뚫었으며 양쪽은 석영 유리창으로 막았다. 흑연관을 감압비가 25 : 1인 10 kW의 트랜스를 사용하여 전류를 직접 흘려서 가열하였다. 전기로의 온도를 측정하기 위하여 측정 시간이 짧은 복사온도계를 제작하였는데 이 온도계는 표준 복사 온도계와 1000 K에서 2500 K까지 비교 교정하여 사용하였다. 이렇게 교정된 복사온도계 정확도는 이 온도 영역에서 0.25% 이내이다. 이 복사온도계에는 펌프 레이저와 스톱스 레이저로 부터 오는 산란광을 막고, 복사온도계의 광검출기의 감응도가 높은 영역만을 투과시키는 장파장 투과 필터와 투과 중심 파장이 850 nm인 간섭필터가 들어 있다. CARS 온도의 정확도를 확인하기 위하여 흑연관 전기로를 원하는 온도가 유지되도록 조절한 후 CARS 신호를 50회 누적하여 5번 측정된 후 평균을 측정 온도로 생각하였다. CARS 신호를 규격화 하기 위한 비공명 신호는 실험하기 전에 1.5 기압의 프로판 가스셀로 측정하였으며 암신호(dark signal)는 측정 전후에 스톱스 레이저를 가리면서 측정하여 앞 절에서 기술한 프로그램을 사용하여 온도를 구하였다. Fig. 6은 복사온도계로 측정된 온도를 기준으로 볼 때 CARS 온도의 오차를 보인 것이다. 오차 표시는 5번 측정된 값의 표준 편차에 해당한다. 이 실험에 사용한 복사온도계의 정확도(0.25%), 전기로의 안정도(0.2%)와 전기로 내부의 온도 분포에 의한 오차(0.2%)를 고려하면 전기로 온도의

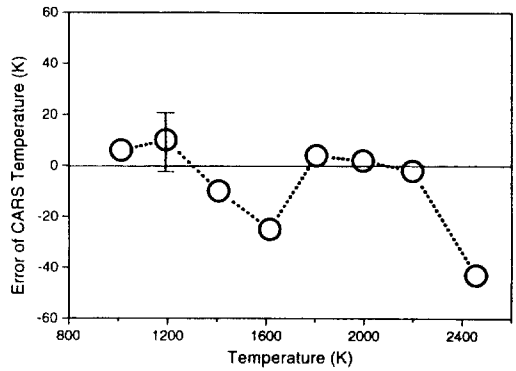


Fig. 6. Error of CARS temperatures measured in comparison to the standards radiation pyrometer.

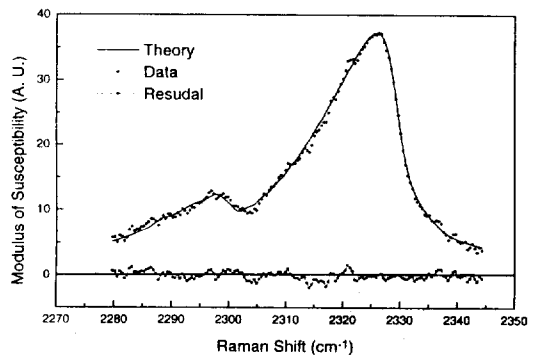


Fig. 7. A single shot of CARS spectrum measured for nitrogen in the graphite tube blackbody furnace at 1600 K.

정확도는 0.5% 이내 이므로 Fig. 6에 표시된 오차는 대부분이 CARS의 온도 측정 오차로 볼 수 있다. 1000 K에서 2400 K 까지 최대 오차는 2% 이내이다. 300 K에서 1300 K의 영역에서 CARS의 온도 측정 정확도를 분석한 저자의 다른 논문을 참고하면 이 영역에서 정확도는 1~1.5%이다.^[29] 이 결과들을 종합하면 300 K에서 부터 2400 K의 온도 영역에서 정확도는 역시 2%이다. 이 정확도를 CARS의 온도 측정 정확도를 연구한 다른 연구자의 것 보다 비슷하거나 좋은 결과이다.^[30,31]

온도가 안정된 전기로에서 레이저의 매 펄스 마다 CARS 스펙트럼을 측정하면 CARS 분광기의 온도 측정 정밀도를 알 수 있다. 측정된 결과는 1000~2400 K의 영역에서 비슷한 결과를 보이기 때문이 1600 K 근방에서 얻은 결과를 제시한다. Fig. 7의 데이터 점은 1600 K로 안정된 전기로에서 한번의 레이저 펄스로 얻은 전형적인 CARS 스펙트럼의 예이다. 그림의 실선은 최소제곱법으로 곡선마춤하여 얻은 1643 K의 이론적인 곡선이다. 정

밀도 측정을 위해서는 한 온도에서 100개의 스펙트럼을 얻은 후 앞 절에서 기술한 프로그램으로 온도를 구하고 구해진 온도의 도수 분포함수를 보면 된다.

Fig. 8은 1600 K에서 얻은 100개의 스펙트럼을 8가지 QFM과 최소제곱법으로 온도를 계산한 후 온도의 도수 분포 함수를 그린 것이다. 앞 절에서 예상한 것 처럼 주 밴드의 선폭을 QFP로 사용하는 QFM1-QFM2은 다른 방법 보다 산란이 심하고 곡선 최대값의 비를 QFP로 사용하는 QFM4는 QFP의 온도 분해능이 QFM8보다 좋지만 밴드의 두 최대값만을 사용하므로 밴드의 적분을 사용하는 다른 방법 보다 산란이 더 심하다. 한가지 주목이 되는 결과는 최소제곱법으로 얻은 결과가 적분을 사용하는 QFM7이나 QFM8보다 산란이 더 심하게 나타났다. 계산에 소요되는 시간도 최소제곱법이 10배 이상 더 걸리는 것은 고려하면 특별한 경우를 제외하고 적분을 사용하는 QFM이 더 유익할 수도 있다. Fig. 9는 Fig. 8에서 얻은 온도들의 평균과 표준편차를 보인 것이다. 적분을 QFP로 사용하는 방법들의 표준편차를 비교하면

표준편차가 작은 순서는 Fig. 4에서 보인 QFP의 온도 분해능이 좋은 순서와 일치하는 흥미로운 결과를 얻었다. 분산이 가장 작은 QFM7의 표준편차는 ± 35 K로 이 온도에서 순간 온도 측정의 정밀도로 볼 수 있다. QFP로 선폭을 사용하지 않는 방법들(QFM5-QFM8)로 얻은 평균 온도는 표준편차의 범위 내에서 일치하므로 순간 온도를 분석하기 위하여 이 방법들 중 어느 것을 사용하여도 무방하다. 이 연구에서 얻은 CARS의 온도 측정 정밀도는 Eckbreth^[7]가 얻은 100 K, Lange^[31]가 얻은 ± 50 K

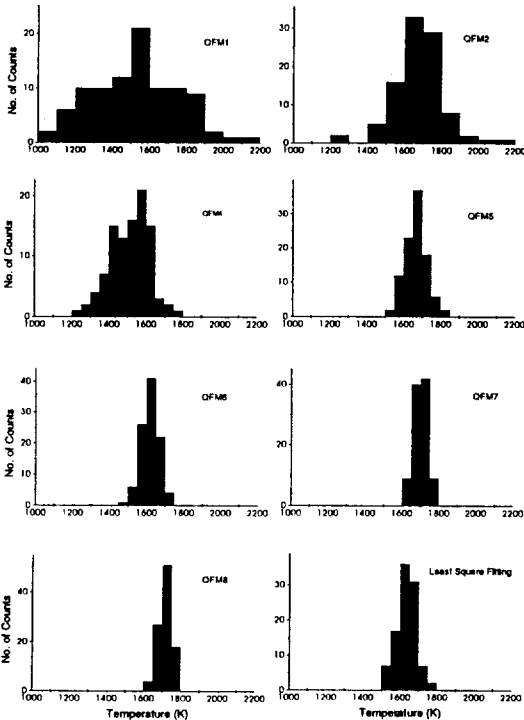


Fig. 8. Temperature histograms of 100 shots of CARS spectra which are measured for nitrogen in the graphite tube blackbody furnace at 1600 K and calculated by the quick fit methods and a least square fitting method.

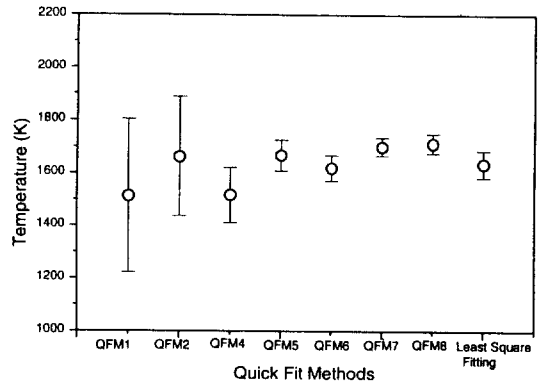


Fig. 9. Means and standard deviation of the 100 shots of CARS temperature for the quick fit methods and a least square fitting method.

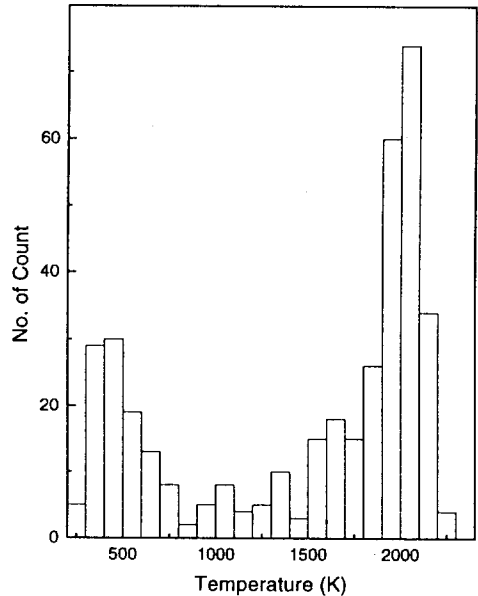


Fig. 10. Temperature histogram measured at the position below 3 mm from the stagnation plane of a stagnation turbulent burner .

(300~300 K의 온도 영역에서) 보다 더 좋은 결과이다. 이것은 스톱스 레이저를 사용하여 모드 잡음을 줄이고 온도를 계산하는 방법을 개선했기 때문으로 생각된다.

이 분광기의 순간 온도 측정의 능력을 확인하기 위하여 난류 연소 상태의 질소 온도를 측정하였다. 실험에는 정체점 난류 연소기(stagnation turbulent burner)를 사용하였는데 이 버너는 원반형의 화염이 버너의 수직 방향으로 급격이 요동하는 화염이다. 정체면에서 얼마 떨어진 지점을 CARS로 측정하면 탄 가스과 아직 타지 않은 연료의 경계면으로 결정되는 화염면이 측정 지점을 급격히 요동하게 된다. 이러한 난류는 측정 부피에 두 개의 온도가 존재한다고 가정한 모델이 적합하다. Fig. 10은 프로판을 연료로 사용하고, 당량비를 1, 유속을 1 m/s로 했을 때 정체면으로부터 13 mm 아래에 있는 지점을 CARS로 400 펄스에 대하여 측정하고 얻어진 온도의 도수를 그린 것이다. 이 때 얻어진 온도는 레이저의 펄스 지속 시간이 10 ns 이하인 것을 고려하면 측정된 온도의 변화는 화염면의 요동에서 기인한다고 볼 수 있다. 온도의 도수 분포를 보면 온도가 다른 두 종류의 가스가 존재하는 것 처럼 보이는데, 이는 탄 가스과 아직 타지 않은 연료가 측정면을 움직이기 때문에 마치 두 개의 온도가 있는 것 처럼 보인다. 화염의 온도는 약 2000 K로 측정되었고 타지 않은 연료의 온도는 약 400 K로 측정되었다. 여러 지점에서 도수 분포 함수를 측정하였으며 이 화염의 난류 모델을 CARS 측정 결과로 부터 해석할 수 있는 방법을 연구 중이다. 실험에서 본 것 처럼 이 분광기는 두 가지 온도로 급격히 변하는 난류에서 순간 온도를 측정하여 난류를 이해할 수 있는 방법을 제공할 것이다.

VI. 결 론

레이저 펄스가 지속되는 수 나노 초 이내에 순간 온도를 측정할 수 있는 CARS 분광기를 제작하였다. 이 분광기의 레이저가 설치된 광학대와 CARS 신호 중에서 펌프광들의 배경 잡음을 제거하는 검출부는 이동이 가능하도록 제작하였으며 신호를 분광시키기 위한 단색화 장치는 자작하여 광학대의 아래에 설치하였다. 다채널 광검출기로 측정된 CARS 스펙트럼을 이론적인 스펙트럼과 비교하여 온도를 계산할 수 있는 프로그램을 작성하였다. 이 프로그램은 스펙트럼을 최소제곱법으로 곡선 맞춤하여 온도를 계산하는 방법과 온도 민감 변수를 사용하여 온도를 계산할 수 거의 모든 방법을 포함하고 있다. CARS로 측정된 온도의 정확도를 확인하기 위하여

고온에서 일정한 온도를 유지할 수 있는 흑연관 흑체로를 제작하였다. CARS로 측정된 온도와 복사온도계로 측정된 온도를 1000 K에서 부터 2400 K 비교한 결과 CARS 온도의 정확도는 $\pm 2\%$ 이내임을 알 수 있었다. 온도 측정의 정밀도를 측정하기 위하여 한 온도에서 100개의 스펙트럼을 매 레이저의 펄스 마다 얻고 여러 가지 QFM으로 온도를 계산해 보았다. 1000 K 이상의 온도에서 신폭을 온도 민감 변수로 사용하는 QFM은 분산이 큰 결점이 있으며 밴드의 비를 온도 민감 변수로 사용하는 두 가지 QFM의 분산은 최소제곱법으로 얻은 온도의 분산 보다 작은 것을 알 수 있었다. 또한 적분을 사용하는 QFM의 분산의 크기는 온도 민감 변수의 온도 분해능의 낮은 순서와 일치하는 결과를 얻었다. 가장 분산이 작은 QFM으로 얻은 분광기의 온도 측정 정밀도는 1600 K에서 ± 35 K로 정확도 보다 약간 크다. 이 분광기를 이용하여 순간적으로 온도가 변하는 난류의 온도 분포 함수를 측정하여 이 장치의 응용 가능성을 보였다.

참 고 문 헌

- [1] I. A. Stenhouse, D. R. Williams, J. B. Cole and M. D. Swards, *Appl. Opt.* **18**, 3819 (1979).
- [2] David Klick, K.A.Marko, and L.Rimai, *Appl.Opt.*, **20**(7), 1178-1181 (1981).
- [3] R. L. Farrow, P. L. Matrern, and L. A. Rahn, *Appl. Opt.* **21**, 3119 (1982)%,
- [4] R. J. Hall and L. R. Bordeker, *Appl. Opt.* **23**, 1240 (1984).
- [5] M. Pealat, P. Bouchsrdy, M. Lefebvre, and J. P. Taran, *Appl. Opt.*, **24**, 1012 (1985).
- [6] N. Wenzel, B. Lange, and G. Marowsky, *Appl. Phys.* **B51**, 61 (1990).
- [7] A. C. Eckbreth, G. M. Dobbs, J. H. Stufflebeam, and P. A. Tellex, *Appl. Opt.*, **23**, 1328 (1984).
- [8] E. J. Beiting, *Appl. Opt.* **25**, 1684 (1984).
- [9] Marcus Alden and Svante Wallin, *Appl. Opt.* **24**, 3434 (1985).
- [10] T. Nakada, T. Itoh, and Y. Takagi, Application of CARS to development of high compression ration spark ignition engine, SAE Technical Paper #932644, 1993.
- [11] M. J. Cottreau, F.Grisch, and J.J. Marie, *J. Appl. Phys.*, **B51**, 63 (1990).
- [12] D. Bradley, et al., Measurement of temperature PDF in turbulent flame by CARS technique, 24th Symposium (International) on Combustion, in

- Brisbane, Australia, 1992.
- [13] P. Magre, P. Moreau, G. Collin, R. Borghi, and M. Pealat, *Com. Flame*, **71**, 147 (1988).
- [14] Douglas A. Greenhalgh, Fiona M. Porter and William A. England, *Com. Flame*, **48**, 171 (1983).
- [15] Meier, I. Plath, and W. Stricker, *J. Appl. Phys.*, **B53**, 339 (1991).
- [16] F. Huisken and T. Pertsch, *Chem. Phys. Lett.*, **123**(12), 99 (1986).
- [17] T. Dreier and Jurgen Wolfrum, *J. Chem. Phys.*, **80**(2), 957 (1984).
- [18] R. J. Hall, J. F. Verdick, A. C. Eckbreth, *Opt. Commun.*, **35**, 69 (1980).
- [19] R. J. Hall, *Opt. Commun.*, **52**(5), 360 (1985).
- [20] D. A. Greenhalgh, and R. J. Hall, *Opt. Commun.*, **57**(2), 125 (1985).
- [21] H. Kataoka, S. Maeda, and C. Hirose, *Appl. Spectrosc.* **36**(5), 565 (1982).
- [22] R. E. Teets, *Opt. Lett.*, **9**(6), 226 (1984).
- [23] M. A. Yuratch, *Mol. Phys.* **38**(2), 625 (1979).
- [24] R. A. Rahn and P. E. Palmer, *J. Opt. Soc. Am.* **B3**, 1164 (1986).
- [25] R. L. Farrow, R. Trebino, and R. E. Palmer, *Appl. Opt.* **26**(2), 331 (1987).
- [26] P. Snowdon, S. M. Skippon, P. Ewart, *Appl. Opt.*, **30**, 124 (1991).
- [27] A. C. Eckbreth, G. M. Dobbs, J. H. Stufflebeam, and P. A. Tellex, *Appl. Opt.*, **23**, 1328 (1984).
- [28] 박승남, 박사학위 청구 논문 (한국과학기술원, 1995), pp. 66.
- [29] 박승남, 한재원, 이은성, 이충희, *한국광학회지*, **4**(2), 226 (1993).
- [30] M. Pealat, P. Bouchardy, M. Lefebvre, and J. P. Taran, *Appl. Opt.*, **24**, 1012 (1985).
- [31] B. Lange, M. Noda, and G. Marowsky, *Appl. Phys.* **B49**, 33 (1989).

Precision and Accuracy of CARS spectrometer for Instantaneous Temperature Measurement

Seung Nam Park, Chul Woung Park and Jae Won Hahn
Korea Research Institute of Standards and Science, Taejon, 305-600, Korea

Yong Suhk Gil and Suk Ho Chung
Department of Mechanical Engineering, Seoul National Univ., Seoul 151-742, Korea

(Received: September 5, 1996)

A mobile CARS spectrometer is constructed to measure the instantaneous temperature of gases, of which software include the quick fit methods and a least square fitting method to obtain temperatures from the spectra. Two quick-fit-methods give smaller variance of temperatures than the least square fitting method even though they consume much shorter time to yield temperatures. The precision and accuracy of CARS temperature is measured in the graphite tube blackbody furnace in reference to a radiation pyrometer. The accuracy of the CARS temperature is $\pm 2\%$ from 1000 K to 2400 K and the precision is ± 35 K at 1600 K with the most accurate quick-fit-method. As a demonstration of the instantaneous measurement, the spectrometer is applied for measurement of the turbulent combustion at a certain condition.