

형광 나노 포러스 박막을 이용한 표면 온도 센서의 제작 및 성능 연구 II

Fabrication and Performance Investigation of Surface Temperature Sensor Using Fluorescent Nanoporous Thin Film II

김현정(Hyun Jung Kim), 유재석(Jaisuk Yoo), 박진일(Jinil Park)[†]

아주대학교 기계공학과

Department of Mechanical Engineering, Ajou University, Suwon 443-749, Republic of Korea

(Received October 18, 2013; revision received October 23, 2013)

Abstract We present a non-invasive technique to the measure temperature distribution in nano-sized porous thin films by means of the two-color laser-induced fluorescence (2-LIF) of rhodamine B. The fluorescence induced by the green line of a mercury lamp with the makeup of optical filters was measured on two separate color bands. They can be selected for their strong difference in the temperature sensitivity of the fluorescence quantum yield. This technique allows for absolute temperature measurements by determining the relative intensities on two adequate spectral bands of the same dye. To measure temperature fields, Silica (SiO₂) nanoporous structure with 1- μ m thickness was constructed on a cover glass, and fluorescent dye was absorbed into these porous thin films. The calibration curves of the fluorescence intensity versus temperature were measured in a temperature range of 10-60°C, and visualization and measurement of the temperature field were performed by taking the intensity distributions from the specimen for the temperature field.

Key words Nanoporous(나노 다공성), 2-color measurement(2색 측정), Fluorescent(형광)

[†] Corresponding author, E-mail: jpark@ajou.ac.kr

기호설명

I : 광원의 강도(Light intensity) [W/m^2]
 C : 형광염료의 농도(Concentration of dye) [kg/m^3]
 ϵ : 흡수율 상수(absorption rate constant) [m^2/kg]
 Φ : 양자효율(quantum efficiency)

하첨자

$band\ 1$: 1번째 취득 파장대
 $band\ 2$: 2번째 취득 파장대
 0 : 조사 광원

1. 서 론

최근 나노 기술의 비약적인 발전은 미소영역의 범주에서 적용 가능한 기술을 요구하고 있다. 또 다양한 미소디바이스의 정확한 온도측정은 디바이스 개발과 성능을 위하여 매우 중요한 인자가 된다. 미소 영역에

서 온도를 측정하는 방법은 여러 가지 있다. 크게 분류하면 접촉식과 비접촉식 방법으로 구분할 수 있다. 접촉식 측정방법으로는 저항온도계, 열전대(Thermocouple) 등이 있다.⁽¹⁾ 열전대는 호환성, 사용범위 등을 고려할 때 널리 사용되는 온도계이며, 저항온도계는 열모세관 펌프(Thermocapillary pump), 중합효소 연쇄반응기 등에서 적용된 바가 있으나 유동교란을 발생시킬 수 있고, 온도장을 측정하는 것이 매우 어려운 문제점을 가지고 있다. 비접촉식 방법으로는 레이저 유도 형광법(Laser Induced Fluorescence), 적외선 카메라, 열색성 액정(Thermochromic Liquid Crystal)^(2,3) 등이 있다. 열색성 액정을 사용하여 중합효소 연쇄반응기, 전자부품의 표면 등에서 온도를 측정한 경우가 있으나 액정의 크기가 10 μ m 정도로 나노 스케일의 온도장을 측정하기에는 적합하지 않으며 정밀한 온도측정이 어렵다.

레이저 유도 형광법은 특정 에너지에 해당하는 레이저 파장으로 측정하고자하는 원자나 분자들을 여기시킨 후 나타나는 자발 방출(spontaneous emission)을 검출하여 농도나 온도를 구하는 측정법이다. 그리고 이론과

측정원리가 비교적 간단하고 측정된 신호의 해석이 용이하며 형광염료가 낮은 농도에서도 측정이 가능하다.

기존의 연구자들이 LIF 기법을 이용하여 마이크로 유동 내의 온도장을 측정 한 결과들을 발표하였다.^(4,6) 하지만 고체 표면에서의 측정 결과는 거의 찾아 볼 수 없으며 유동 내의 온도 측정에서도 많은 오차가 발생하는 문제를 가지고 있다.⁽⁷⁾

마이크로 스케일의 공간 해상도를 가지기 위해서는 온도에 따르는 형광 강도의 오차가 충분히 작아야 한다. 따라서 오차를 유발할 수 있는 다양한 인자에 대해 광범위한 분석이 필요하다. 오차를 유발하는 인자로 형광 염료의 용해상태에서의 화학적 불균일성, 염료의 시간에 대한 변화성, 온도 외에 다른 인자에 대한 반응성, 광원의 불균일성 등과 같은 많은 문제들의 해결이 선행되어야 한다. 본 논문의 저자들은 “형광 나노 포러스 박막을 이용한 표면 온도 센서의 제작 및 성능 연구 I”에서 형광염료인 RhB(Rhodamine B)를 나노 구조를 가지는 박막 구조에 도포를 하여 온도에 따라 형광 성능이 다름을 보고 하였다.

본 연구에서는 I편에서 보고한 나노구조를 가지는 형광 박막 제작방법을 이용하여 온도센서를 제작하고 직접 마이크로 크기에서의 온도장을 고체 표면에서 측정하고자 한다. 또한 I편에서 광원의 불균형으로 인해 발생하는 측정 오차를 해결하기 위하여 RhB의 형광 스펙트럼 중에서 2영역의 형광 파장대를 측정하였다. 이를 2색 레이저 유도 형광법(Two-color laser induced fluorescence)이라고 하며 광원의 불균형이나 염료의 불균일성 등과 같은 요인으로부터 발생하는 오차를 줄일 수 있다.⁽⁴⁾ 이를 위해서 2개의 측정 카메라를 사용하였으며 이에 따른 이미지의 완전한 겹침을 위하여 이미지 프로세싱을 수행하였다.⁽⁸⁾ 또한 측정 방법의 공간해상도를 분석하기 위하여 픽셀사이즈에 따른 오차해석을 수행하여 측정 공간해상도의 정확도를 확립하였다.

2. 2색 LIF의 원리

먼저 2색 LIF 기법을 설명하기에 앞서, LIF의 각 기법에 대해 알아보고 장단점을 언급하고자 한다. LIF 기법은 세 가지로 나뉘며 각 기법은 다음과 같다. 첫 번째로 a single dye and a single excitation wavelength(single-color/single-dye techniques)는 하나의 카메라와 하나의 염료를 사용하여 온도에 따른 형광물질의 세기를 측정하는 기법이다. 형광염료의 발광성능을 결정하는 농도와 온도의 두 가지 매개변수 중 하나가 일정할 경우, 둘 중 하나를 측정할 수 있다. 이 기법의 제한 조건으로, 측정하고자 하는 대상의 일정한 부피로부터 광원을 수집하기 위해 Excitation 및 Collection 장치가 반

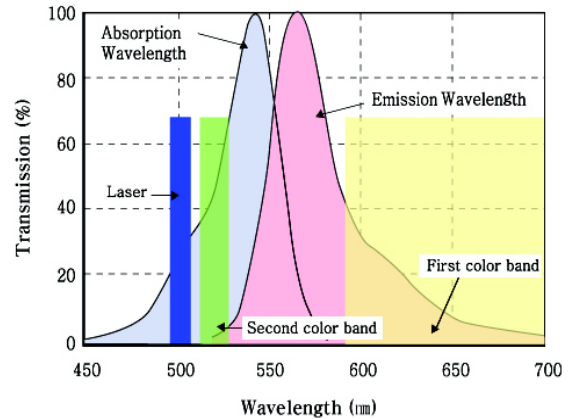


Fig. 1 The absorption and emission wavelength range of Rhodamine B.

드시 필요하다. 또 입사하는 레이저 강도와 농도가 일정해야 한다. 따라서 형광 강도의 세기를 온도변화와 상관시키기 위해서는 특정 기준 상태의 농도와 온도 값으로 보정이 필요하다.

두 번째로 Two-color/two-dye techniques 기법은 두 대의 카메라와 두 개의 염료를 사용한다. 두 염료 중 하나는 온도에 민감하며, 다른 하나는 민감하지 않은 염료이다. 두 개의 염료를 사용하므로 레이저 강도와 광원이 조사되는 부피의 영향을 배제시킬 수 있다. 하지만 두 염료의 형광강도는 농도의 비에 의존하므로 농도의 비가 일정하게 유지되어야 한다.

세 번째로 Two-color/single-dye technique는 두 대의 카메라와 하나의 염료를 사용하는 것이다.⁽⁸⁾ Fig 1과 같이 하나의 염료에서 서로 다른 방출 파장대를 획득하여, 그 비를 취함으로써 형광염료의 농도, 광원이 조사되는 부피, 레이저 강도의 영향을 배제시킬 수 있어 형광강도에 온도만의 영향을 파악할 수 있다. 본 연구에서는 Two-color/single-dye technique을 사용하였다. 실험을 통해 2대의 카메라로부터 얻은 형광 강도의 비는 아래의 식(1)을 통해 계산 할 수 있다.⁽⁴⁾

$$\frac{I_{band1}}{I_{band2}} = \frac{I_0 \cdot C \cdot \epsilon \cdot \Phi_{band1}}{I_0 \cdot C \cdot \epsilon \cdot \Phi_{band2}} \quad (1)$$

여기에서 I_0 는 광원의 세기, C는 형광염료의 농도, ϵ 는 흡수율 상수(absorption rate constant), 그리고 Φ 는 양자 효율(quantum efficiency)을 나타낸다.

3. 실험장치 및 측정 방법

3.1 측정 방법

제작된 나노포러스 형광 박막의 온도민감성 특성을

측정하기 위하여 Fig. 2와 같은 실험장치를 구축하였다. 측정을 위하여 2대의 카메라, 렌즈, 광원, 여러 개의 필터가 필요하다. 이 장치들을 현미경에 모두 장착하여야 한다. 현미경으로는 Olympus사의 BX51 모델을 사용하였고, 광원으로는 현미경에 장착되어 있는 수은램프(Mercury Lamp)를 사용하였는데 수은램프는 백색 광원으로 모든 파장대의 빛이 포함되어 있으므로 특정 파장만을 선택하기 위하여 필터를 장착하였다. 수은램프 앞에는 빛 강도의 불균일성을 완화시키기 위하여 프로스트(Frost) 필터를 위치 시켰다.

일단 RhB 염료의 흡수 파장대만을 광원으로 선택하기 위하여 $488 \leq \lambda_T \leq 512 \text{ nm}$ 의 파장대를 통과시키는 band pass filter를 프로스트 필터 앞에 위치시켰다. 형광 박막으로부터 방출하는 형광 중에서 특정한 2개의 파장대의 빛을 카메라에서 취득하기 위하여 Dichromic mirror($528 \leq \lambda_T \leq 625 \text{ nm}$)를 사용하여 일단 2개의 카메라에 해당 파장대의 빛을 나누어 진행하도록 하고 첫 번째 카메라 앞에는 long-pass filter($\lambda_T \geq 590 \text{ nm}$)를 두 번째 카메라 앞에는 narrow band-pass filter($515 \leq \lambda_T \leq 543 \text{ nm}$)를 설치하였다.

Fig. 2에 필터링과 빛의 경로에 대해서 표시하였다. 사용된 카메라는 PCO사의 1600 모델로서 14 bit의 명암 해상도와 $1600 \times 1200 \text{ pixel}$ 의 공간 해상도를 가진다. 카메라에서 취득한 영상을 컴퓨터 저장하고 이미지 프로세스 과정을 통하여 각 픽셀의 정보를 데이터화 하였다. 형광 강도 측정을 위하여 10배율의 대안렌즈를 사용하였으며, 최종적으로 카메라에 촬영되는 시편의 영역(Field of view)은 $1.2 \text{ mm} \times 0.8 \text{ mm}$ 이었다. 또한 형광 강도와 온도와의 관계를 측정하기 위하여 현미경 스테이지에 설치된 원통형 저항히터에 제작된 시편을 올려놓았다. 히터 표면의 온도는 K형 열전대를 설치하여 측정하였다.

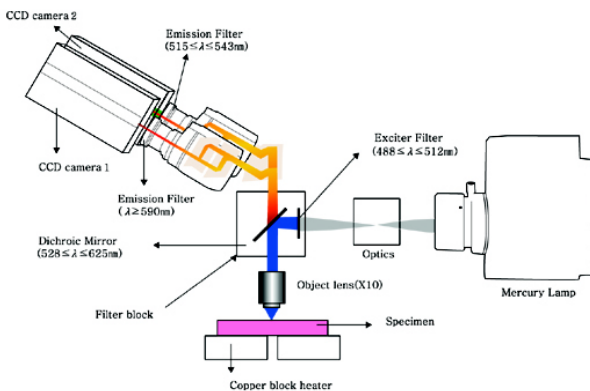


Fig. 2 Schematics of experimental apparatus and the path of light source and emission of Rhodamine B.

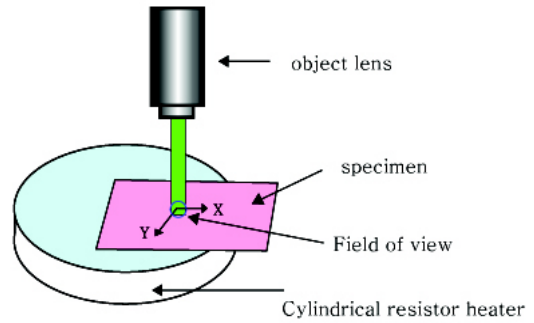


Fig. 3 Schematics of temperature fields.

3.2 온도장 형성 장치

원통형 저항히터를 이용하여 나노 포러스 박막 시편 일부를 히터 표면에 올려놓았으며 시편의 나머지 부분은 대기 온도에 노출시켰다. Fig. 3은 위에서 말한 바를 보여준다. Fig. 2의 실험장치를 이용하여 시편 오른쪽 부분은 대기온도로 두고 시편 왼쪽 부분은 온도를 변화하여 온도장을 형성하였다.

3.3 이미지 보정 방법

두 대의 카메라를 현미경의 접안렌즈부에 설치한 결과 두 이미지가 불일치되는 현상을 피할 수 없다. 이러한 문제는 양쪽 접안렌즈의 프리즘 위치차로 인한 것이다. 이를 해결하고자 Fig. 4와 같은 과정으로 이미지 보정 작업을 하였다.

이미지의 차이를 비교하고자 현미경 받침대에 스케일바의 시편을 올려놓은 후 두 대의 카메라로 이미지를 얻는다. 얻은 두 이미지를 데이터 처리 프로그램을 통해 이진화 시킨 다음 그중 하나의 이미지를 기준으로 삼고 나머지 이미지를 기준 이미지의 스케일바 눈금으로 이동시킨다. 그런 다음 두 이미지를 나눠 비로 표현한 후 그 비의 표준편차가 적을 때까지 기준 이미지로 이동시켜 이동점을 찾은 후 최종적으로 얻고자 하는 결과 이미지에 적용시킨다.

4. 측정 결과

Fig. 5는 온도범위가 $10 \sim 60^\circ \text{C}$ 에서의 로다민에 서로 다른 방출파장대의 형광성능을 보여주고 있다. 동일한 최적의 시편을 24시간의 시간적 차이를 두어 세 차례를 측정하였고 한번 측정 시 200개의 이미지를 평균하여 데이터처리를 하였다. 또한 초기온도에 대해 각 온도별 데이터를 나누어서 표준화(normalization)하였다. 본 실험은 시간 경과에 따른 형광성능의 경향을 보고자 하였으며 또 동일한 시편의 반복성 즉 재현성을 파악

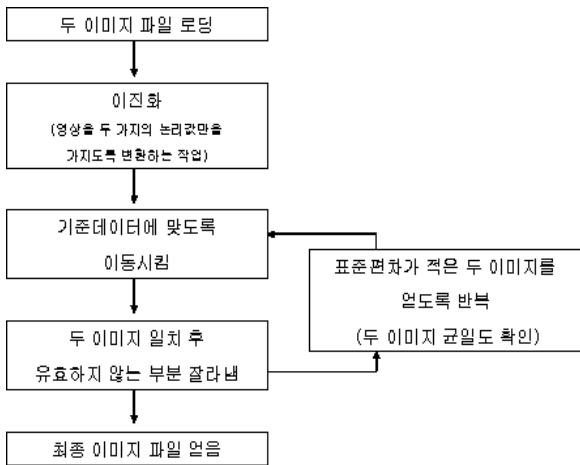


Fig. 4 The modification process of two images.

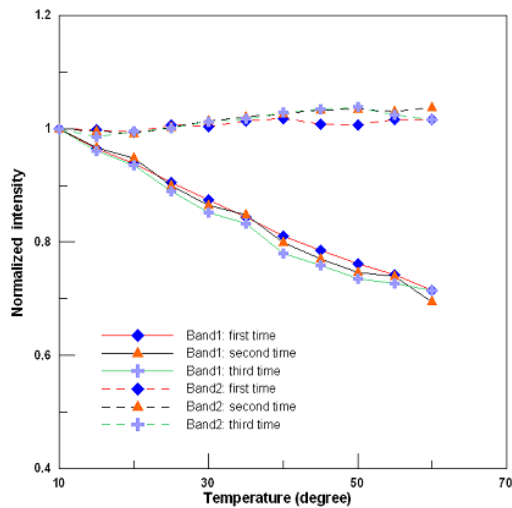


Fig. 5 Fluorescence Intensity curves of two bands as temperature variations.

하고자 하였다. 위의 온도에 따른 형광강도의 비 값은 온도 측정에 사용되었다. 첫 번째 측정된 결과데이터에서 24시간경과 후 측정된 결과 데이터를 비교분석한 결과 그래프의 기울기가 줄어드는 것을 알 수 있다. 각 그래프에 대한 온도감소율이 대략 6% 정도 차이가 남을 보였다. 이러한 차이가 나타나는 원인으로 광화학적 분해를 들 수 있다. 그러므로 여기와 방출간의 전이를 반복하는 동안 형광 염료의 방출세기가 감소한다. 또 다른 원인으로 CCD 카메라의 픽셀간의 불안정한 노이즈를 들 수 있다.

또한 형광 박막의 공간해상도를 분석해 보기 위하여 카메라의 픽셀들을 묶어 측정 포인트의 면적을 넓혀가며 불확실도 값들을 분석해 보았다. 많은 수의 픽셀들을 묶을수록 불확실도는 감소하였다. 물론 공간해상도

는 떨어지지만 측정에 따라 공간해상도와 측정 불확실성 중 더 중요한 것을 선택할 수 있는 기준이 될 수 있다고 사료된다. Table 1에 그 결과들을 정리하였다.

온도장 측정을 위하여 Fig. 3의 장치를 사용하여 온도장을 형성하고 이를 측정하였다. Fig. 6은 그 측정 결과를 나타낸다. Fig. 6에서 x, y축은 측정 범위를 나타내고 오른쪽 막대그래프는 온도 그리드(등급)을 나타낸다. 원통형 온도의 표면 온도는 60°C로 설정하였다. 외부의 기온은 겨울에 난방이 되지 않는 실내 조건이어서 5°C로 측정되었다. 사용한 형광 염료인 Rhodamine B의 경우 온도 상승함에 따라 형광 강도가 감소하기 때문에 Fig. 6의 그림에서 붉은색으로 갈수록 온도가 낮은 것이며 파란색으로 갈수록 온도가 높음을 나타낸다. 좌표(0, 0)의 위치는 원통형 히터의 중심을 나타내기 때문에 원통의 중심에서 멀어질수록 온도가 낮음을 알 수 있다. 이를 통해 다양한 온도를 측정할 수 있음을 알 수 있었다.

Table 1 Uncertainties by pixels grouping

Pixel	Spatial resolution (um)	Intensity ratio uncertainties	Temperature uncertainties
1 by 1	1.5×1.3	±0.321	±1.189
10 by 10	15×13	±0.131	±0.490
79 by 56	118.5×72.8	±0.111	±0.414
158 by 112	237×145.6	±0.057	±0.213
316 by 224	474×291.2	±0.006	±0.020
632 by 448	948×582.4	±0.018	±0.066
790 by 560	1185×728	±0	±0

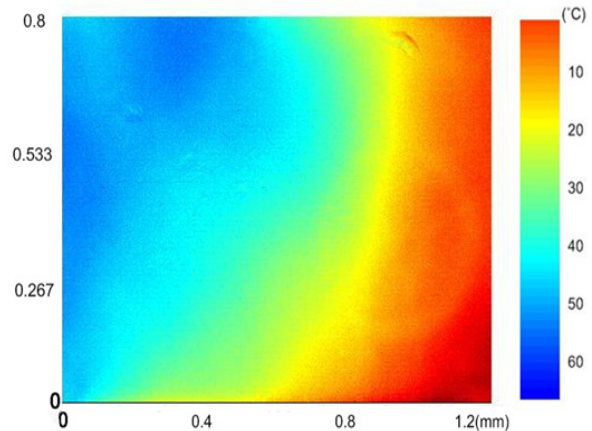


Fig. 6 Result of temperature field measurement(Heater surface : 60°C, ambient : 5°C).

5. 결 론

본 연구에서는 유리판에 나노포러스 박막을 제작하였고 포러스 공간에 온도민감성이 높은 Rhodamine B 용액을 채우는 과정을 통해 시편에 온도센서 기능을 부여하였다. 고배율의 렌즈와 고해상도의 CCD 카메라, 필터와 기타 광학 유닛을 통해 고감도 광학 시스템을 개발하였고 정확한 온도장을 측정하고자 서로 다른 방출파장대를 사용하는 2-LIF 측정 시스템을 구축하였다.

제작된 형광 나노 포러스 박막(온도당 형광 감소율 : 6%)에 온도장을 형성시켜 각 영역별 형광강도를 측정하였다. 히터 표면의 온도는 60°C였고 외부 공기온도는 5°C로 설정되었다. 이러한 측정으로 얻어진 결과를 통해 시편의 영역별 온도분포에 따른 형광 강도의 차이를 볼 수 있었다. 이를 통해 다양한 온도 조건에서 온도분포 해석이 가능하였다. 온도장이 형성된 형광 나노 포러스 박막의 영역별 형광 세기를 가시화함으로써 박막의 온도 뿐 아니라 온도를 알고자하는 물체의 변형없이 시편과 물체 표면을 밀착시켜 물체의 온도를 측정하는데 사용가능하도록 하였다.

후 기

본 연구는 교육과학기술부(No. 2010-0022588)의 지원과 2012년도 아주대학교 일반연구비 지원으로 수행된 연구결과입니다.

Reference

1. Eckert, E. R. G. and Goldstein, R. J., 1970, Measure-

ments in Heat Transfer, McGraw-Hill, New York.

2. Dabiri, D. and Gharib, M., 1990, Digital particle image thermometry and its application to a heated vortex ring, Fluid Measurement and Instrumentation Forum, ASME FED-95, pp. 27-34.

3. Dabiri, D. and Gharib, M., 1991, Digital particle image thermometry : the method and implementation, Exp. Fluids, Vol. 11, pp. 77-86.

4. Sakakibara, J. and Adrian, R. J., 1999, Whole field measurement of temperature in water using two-color laser induced fluorescence, Exp. Fluids, Vol. 26, pp. 7-15.

5. Hishida, K. and Sakakibara, J., 2000, Combined planer laser-induced fluorescence-particle image velocimetry technique for velocity and temperature fields, Exp. Fluids, Vol. 29, pp. 129-140.

6. Oh, Y. S., Baek, I. G., Kim, H. J., and Yoo, J. S., 2007, The visualization of temperature field for nanoporous thin film using laser-induced fluorescence, Trans. KSME, 07S(091), pp. 3112-3117.

7. Kim, H. J., Kihm, K. D., Allen, J. S., 2003, Examination of ratiometric laser induced fluorescence thermometry for microscale spatial measurement resolution, International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol. 46, pp. 3967-3974.

8. Lavieille, P., Lemoine, F., Lavergne, G., and Lebouche, M., 2001, Evaporating and combusting droplet temperature measurements using two-color laser-induced fluorescence, Exp. Fluids, Vol. 31, pp. 45-55.