

인광입자(Sr,Mg)₂SiO₄:Eu²⁺를 이용한 액체의 온도장 측정에 관한 연구

송동진* · 이현창†

Study on Temperature Field Measurement of Fluid using Phosphor Particle (Sr,Mg)₂SiO₄:Eu²⁺

Dong Jin Song* and Hyunchang Lee†

Abstract Phosphor particles (Sr,Mg)₂ SiO₄:Eu²⁺ were suspended in deionized water in quartz cuvette and used for measuring liquid temperature field by using two-color-ratio method. In the temperature range of 23~77°C, it showed the relative error from 2.4% to 4% and the temperature sensitivity of 0.65 %/°C at 30°C and 0.95 %/°C at 77 °C. This performance is comparable to measurement techniques using thermographic liquid crystal or laser induced fluorescence or other thermographic phosphor particle. Among investigated potential error sources, the particle number density affected the intensity ratio and the temperature, but the effect of laser fluence was not evident.

Key Words : Phosphor particle(인광입자), Two-color-ratio method (이색강도비법), Thermographic phosphor(열화상 형광체), Liquid temperature field measurement(액체온도장 측정)

기호설명

k_f : 물의 열전도도[W/m·K]

d_p : 인광입자의 직경[μm]

$C_{p,p}$: 인광입자의 비열[J/kg·K]

ρ_p : 인광입자의 밀도[g/cm³]

1 서론

인광입자는 세라믹 물질에 소량의 희귀금속을 도핑한 것으로 자외선 영역의 빛을 흡수하여 가시광선 영역의 빛을 발하는 발광 물질이다.

인광의 세기, 수명, 그리고 발광 파장이 온도에 따라 변화하는 성질을 이용하여 1950년대부터 표면 온도를 재는 시도가 이루어져 왔고, 전자장비의 발달과 더불어 표면 온도를 정밀, 정확하게 잴 수 있는 기술로 입증되었다¹⁾.

한편 이 인광 입자를 입자영상유속계(Particle Image Velocimetry)의 추적입자로 이용하여 기체의 온도와 속도를 동시에 측정하려는 시도가 지난 10년간 활발하게 이루어졌고²⁻⁵⁾, 이를 액체에도 적용하여 액적 또는 분무의 온도장을 측정하

† Department of Mechanical Engineering,
Kyungnam University
E-mail: leehc53@kyungnam.ac.kr

* Department of Mechanical Engineering,
Kyungnam University

려는 시도도 다시 각광받고 있다. Abram등^[6]은 ZnO 인광입자를 이용한 이색 강도비 측정법(Two color ratio method)을 사용하여 유체의 온도장을 측정하는 연구를 진행하였다. Fond등^[7-8]은 다양한 인광입자를 벌크 파우더일 때와 액체 내 분산되었을 때의 분광을 측정하여 분산형태에 따른 스펙트럼의 변화를 확인하여 그 차이를 비교하였다. 이 중 SMP를 더욱 면밀히 연구하여 유체의 온도를 측정하기 위해 중요한 특성(입자 크기, 비열, 온도민감도, 레이저세기의 영향, 수 농도의 영향 등)을 조사하였다.

본 연구에서는 인광입자의 한 종류인 $(\text{Sr},\text{Mg})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 를 액체장의 온도를 측정하기 위해 현탁액의 형태로의 적용 가능성을 확인하는데 그 목적을 둔다.

2. 실험장치 및 실험방법

2.1 실험장치 셋업

Fig. 1은 인광입자로부터 나오는 신호를 2색 강도비 방법(Two-color-ratio method)을 통해 측정하기 위한 실험장치의 간략도이다. 10Hz, Nd:YAG 펄스 레이저로부터 1mJ/puls의 355nm의 빛을 인광입자 현탁액이 담긴 큐벳에 도달할 수 있도록 광학계를 구성하였다. 레이저 가진에 이은 인광 신호를 Beam splitter를 통해 나눈 후, 서로 다른 파장대를 흡수하는 2개의 필터가 장착된 sCMOS 카메라(Zyla 5.5, Andor社)에 각각 저장하였다. 카메라는 delay generator(9420, Quantum composer社)를 이용하여 레이저와 동기화하였고, 4x4 Hardware binned, 30 μs 의 노출 시간을 갖도록 설정하였다. 각각의 카메라에는 50mm f#1.4의 렌즈가 장착되었고, 수광렌즈로는 105mm f#2.8을 사용하였다. 측정 시의 액체의 온도를 파악하기 위하여 T-type 열전대를 큐벳 내부에 삽입하여 기준 온도를 측정하였다.

이때 355nm 가진에 의해 물에서 나온 405nm 영역의 라만신호^[6]와 강한 355nm산란을 제거하기 위해 GG400과 Hoya Prol MC UV 필터를 수광렌즈 앞에 장착하였다. 각 채널에서의 최종 투

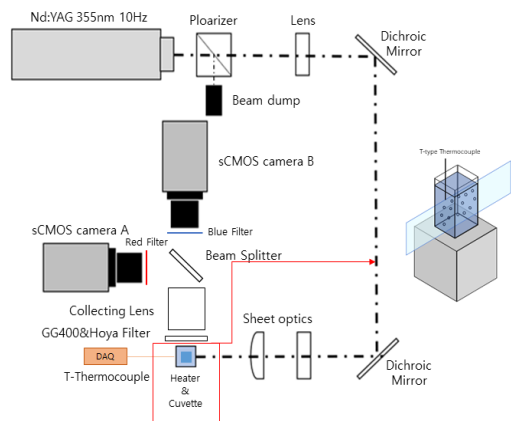


Fig 1. Setup for temperature field measurement of fluid using phosphor particles.

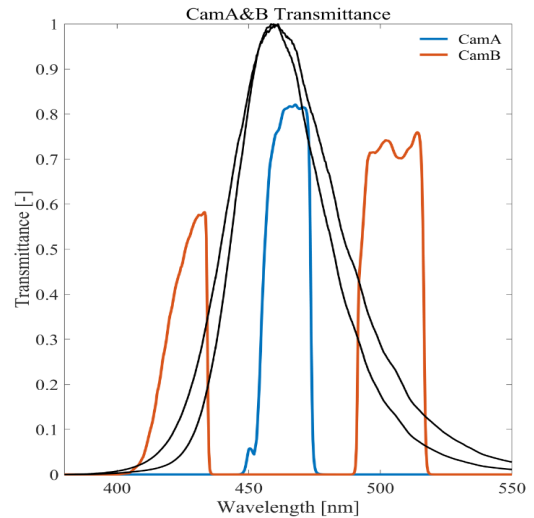


Fig 2. Emission spectrum of $(\text{Sr},\text{Mg})_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ particles using 355nm excitation.

과율과 두 개의 서로 다른 온도에서 인광입자의 스펙트럼을 Fig. 2에 도시하였다.

2.2 입자의 온도추적 특성

온도추적 특성은 인광입자를 사용한 유체의 온도장 측정의 정확도 측면에서 중요한 요소이며, 이는 입자의 밀도, 비열, 직경과 연관된다. 입자의 온도응답시간에 대한 모델은 Abram^[9]를 참고하여 입자의 직경 및 물성값에 따른 아래 식을 이용하여 계산하였다.

$$\tau_T = \frac{\rho_p C_{p,p} d_p^2}{12k_f}$$

τ_T 는 입자의 온도응답시간, ρ_p , $C_{p,p}$, d_p 는 각각 입자의 밀도, 비열, 직경을 나타내며 k_f 는 입자와 혼합되어지는 물의 열전도계수이다. 본 실험에서 사용하는 입자의 평균 직경 10 μ m에서의 온도 응답시간은 25 μ s으로 충분히 짧은 온도 응답시간을 나타내었다.

2.3 현탁액 준비

인광입자는 Phosphor Technology사의 (Sr,Mg)₂SiO₄:Eu²⁺입자를 사용했으며 레이저 회절 방법을 이용한 입자의 평균 직경은 12~13 μ m로 측정됐다. 현탁액은 3g/L의 농도로 인광입자와 탈이온수를 혼합하였고 입자간의 뭉침을 제거하기 위해 초음파와 분쇄기를 사용한 후, 5~8 μ m의 공경을 가진 여과지를 사용하여 현탁액을 여과하였다.

2.4 측정방법 및 후처리

Fig. 3은 후처리의 개요와 각 과정의 예시 그림이다. 현탁액을 큐벳에 넣고 이를 일정한 온도를 유지할 수 있는 히터 위에 배치하고 가열하여 T₁=23 $^{\circ}$ C, T₂=40 $^{\circ}$ C, T₃=55 $^{\circ}$ C, T₄=65 $^{\circ}$ C, T₅=77 $^{\circ}$ C의 정상상태에 도달하면, 각각의 카메라로부터 300장의 이미지를 획득하였다. 두 개의 카메라로부터 획득된 Raw Image를 이미지의 위치정보를 교정해주는 Image Registration을 이용하여 CamB(투과)를 수정하고, 이후 두 이미지를 나누어 주어 각 온도에 따른 강도비(intensity ratio)를 구하였다. 상온에서의 평균 강도비 이미지로 순간 강도비 이미지를 나누어 주는 White Image Correction을 수행한 후, 5 by 5 median 필터를 이용하여 Smoothing을 하였다. 이후 각 이미지로부터 동일 위치 면적에서의 강도비의 평균값을 획득하여 열전대를 이용한 온도에 따른 강도비 교정 곡선을 2차 다항식의 형태로 획득하였고, 이를 이용하여 이후 측정된 강도비를 온도로 교정하였다.

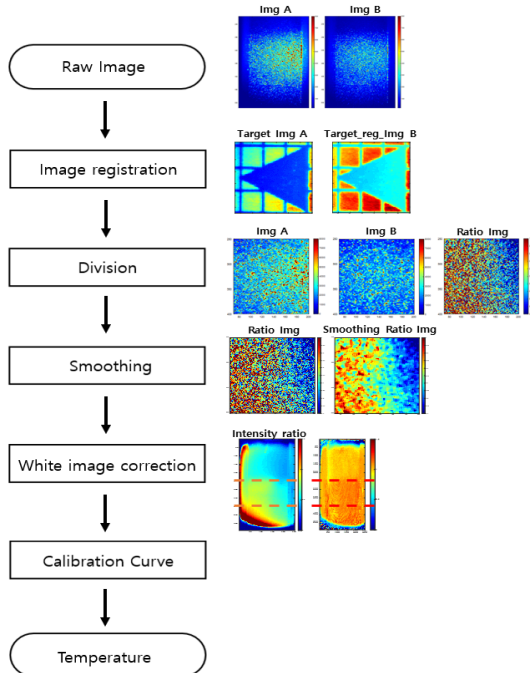


Fig 3. Outline of Post-Processing.

3. 결과: 오차의 원인들과 시연

온도에 따른 인광신호의 강도비 변화를 이용한 본 측정법에서, 강도비가 온도가 아닌 다른 요소에 의해 변할 때 측정 오차가 생긴다. 기존 연구에서는 이에 대한 원인으로 레이저 세기, 수농도의 영향을 많이 다루었다^[3,5-8]

따라서 본 연구에서도 이에 대한 영향을 주로 살펴보고 라만신호의 영향도 살펴보았다.

3.1 라만신호의 영향

큐벳에 인광입자를 혼합하지 않은 탈이온수만을 주입하여 10 mJ/puls의 355nm 레이저 가진에 의한 라만신호의 크기를 측정하고, long pass 필터를 이용하여 라만신호의 제거가 가능한지를 확인하였다. Fig. 1에서 cameraA에 장착된 Red filter의 경우 405nm를 투과하므로(Fig. 2 참조), 라만신호가 기록될 수 있고, 오차로 작용할 수 있다.

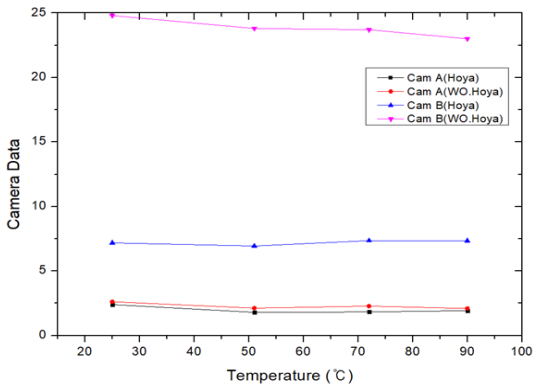


Fig 4. Effects of Hoya filter and Raman signal.

따라서 Fig 1에 도시된 모든 필터 중 Hoya 필터만을 제거하고 촬영한 이후, Hoya 필터도 장착하고 다시 한번 촬영하였다. 이를 다섯 가지의 온도 범위($T_1=25^\circ\text{C}$, $T_2=52^\circ\text{C}$, $T_3=72^\circ\text{C}$, $T_4=90^\circ\text{C}$)에서 반복하였고, 이를 Fig. 4에 도시하였다.

온도변화에 따라 라만신호의 세기는 거의 변화가 보이지 않았으나, Hoya 필터를 장착하지 않았을 경우, 예상대로 투과 카메라(Camera B)에서는 25 카운트 정도 검출되었으나, 필터를 장착한 후에는 7.5 정도로 감소하였고, 반사 카메라(Camera A)의 경우 차이가 거의 없었다. 이는 이후 측정되는 인광신호에 비해 매우 작은 값으로 라만 신호의 온도측정 오차에 대한 영향은 미미할 것으로 예측할 수 있다.

3.2 입자의 수농도의 영향

입자의 수농도의 영향을 파악하기 위하여 동일한 온도(40°C)에서 입자 수의 변화에 따른 강도비를 비교하였다. Beyrau 그룹의 이전연구^[6]처럼 355nm 가진에 추가적으로 532nm 가진을 이용하고, 이때 Mie 산란신호를 이용하여 입자수를 정확히 측정함으로써 수농도의 영향을 조사하는 것이 이상적이나 본 연구에서는 동일한 세기의 레이저 가진에서 측정되는 인광신호의 세기가 수농도와 비례한다고 가정하고 조사를 진행하였다. Fig. 5의 (a)는 입자수가 많아 신호의 세기가 컸을 경우이고, (b)는 입자수가 적어 신호의 세기도 약한 경우이다. 입자수의 변화는 시간에 따른 입자들간의 뭉침과 벽에 달라붙음으로 추측된다. 이때의 측정된 카운트와 강도비를 Table 1에도 요약하였다. Fig. 5의 강도비는 white image correction을 거치기 이전이어서 좌우의 강도비가 균일하지 않다. 입자의 수농도의 강도비에 대한 영향을 보면 수농도가 작았을 때 강도비가 0.998에서 컸을 때 0.708로 약 29% 정도 크게 감소한 것을 확인할 수 있다. 수농도는 강도비에 크게 영향을 미치므로 측정에서 조절해야 하는 매우 중요한 인자이다. 신호가 약했을 때 SNR은 30 정도였다. SNR을 측정하기 위한 오차(Noise)의 측정은 인광입자를 레이저로 가진하지 않고 300장을 촬영한 이후 각 픽셀에서의

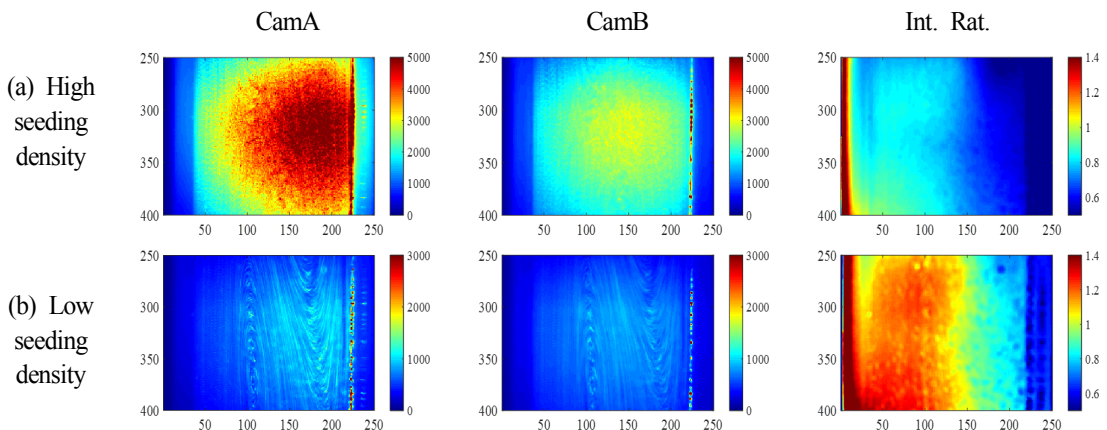


Fig 5. Effect of the seeding density on the intensity ratio.

Table 1. The effect of seeding density on intensity ratio

		CamA [a.u.]	CamB [a.u.]	Intensity ratio [-]
입자수多	Counts	4632	2815	0.708
	SNR	137	106	
입자수少	Counts	902	809	0.998
	SNR	27	31	

표준편차를 구하고, 이를 일정영역에서 평균한 값을 이용하였다.

입자의 수농도에 따른 강도비의 변화는 입자의 여기 및 방출 스펙트럼이 중첩될 경우 인광 입자에서 방출되어진 인광신호의 일부가 광 경로상의 존재하는 인광입자에 의하여 재흡수 될 경우 발생되어질 수 있다. $(\text{Sr,Mg})_2\text{SiO}_4\text{:Eu}^{2+}$ 인광 입자의 경우 여기 및 방출 스펙트럼이 430 nm ~ 450 nm 대역에서 중첩이 되기 때문에 수광 경로에 존재하는 입자들이 투과 채널에 기록되어야 할 빛의 일부를 흡수하여 수농도가 높을 경우, 강도비가 작아진다고 추측된다.

3.3 레이저 세기의 영향

물과 혼합된 인광입자에 대하여 상온에서 355 nm 레이저의 세기에 따른 강도비의 의존성에 대하여 실험하였다. 레이저의 세기는 19, 38, 76, 152, 304 mJ/cm^2 로 레이저 세기를 변화하였을 때의 각 카메라에서의 신호값과 강도비를 획득하였으며, 이를 Fig. 6과 7에 나타내었다.

Fig. 6에서 확인되는 것처럼 $(\text{Sr,Mg})_2\text{SiO}_4\text{:Eu}^{2+}$ 도 다른 인광입자들처럼^[3,5,6,8] 아주 작은 레이저 세기에서 신호가 선형구간을 벗어났고, 본 연구에서 진행한 가진세기 범위에서는 선형구간이 확인되지 않았다. 레이저 세기의 강도비에 대한 영향은 측정에서 매우 중요하다. 왜냐하면, 일반적인 2차원 측정에서 레이저 세기는 공간에 대해 가우시안 분포를 띠어 그 세기가 일정하지 않기 때문이다. 특히 ZnO의 경우 높은 온도민감도를 지닌 인광입자이지만, 동시에 레이저 세기에 대한 영향도 민감하여 이를 위한 보정이 받

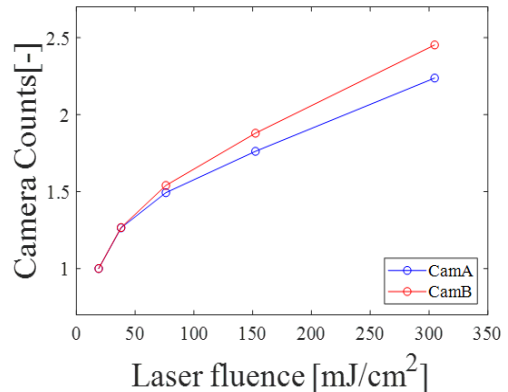


Fig 6. Luminescence signal(CamA, CamB) against laser fluence. Each camera counts was normalized with the lowest value.

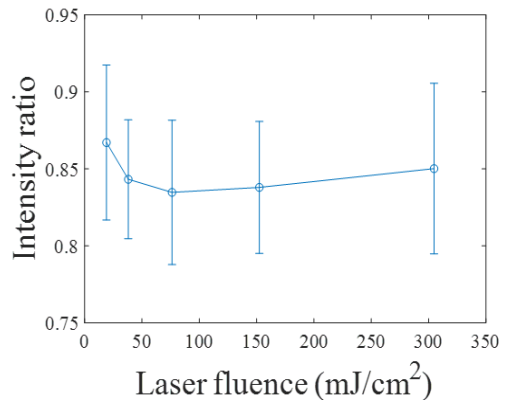


Fig 7. Intensity ratio against the laser fluence.

드시 필요하며,^[6,9] 더욱이 이러한 보정방법도 가진 빛이 유체의 온도변화에 의한 굴절을 차이에 의해 임의로 그 방향을 바꾸는 경우 불가능하다. $(\text{Sr,Mg})_2\text{SiO}_4\text{:Eu}^{2+}$ 의 경우, Fig 7에서 보이는 것처럼 본 연구에서의 측정오차를 고려하였을 경우에는 레이저 세기의 강도비에 대한 영향은 미미한 것으로 판단된다.

3.4 교정곡선

온도와 강도비 관계에 대한 교정곡선을 구하기 위하여 레이저 세기를 1mJ/puls로 유지를 시키며 $T_1=23^\circ\text{C}$, $T_2=40^\circ\text{C}$, $T_3=55^\circ\text{C}$, $T_4=65^\circ\text{C}$, $T_5=77^\circ\text{C}$ 총 5개의 온도 구간에서의 강도비 이미지로

부터 광 경로의 특정영역(50x50 pixel)에서의 평균값과 T-type 열전대로 측정된 기준온도를 통하여 교정곡선을 구하였고, 이를 Fig. 8에 나타내었다. 이때 사용한 샘플을 바탕으로 상대오차를 구하여 Table. 2에 나타내었다.

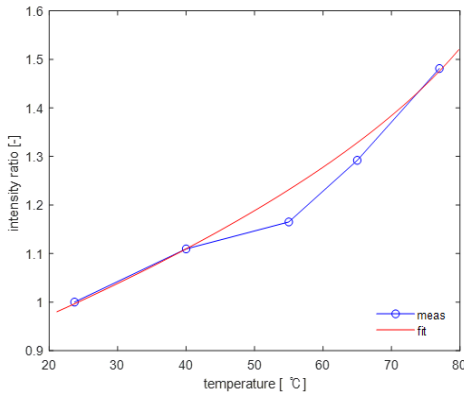


Fig 8. Temperature calibration curve.

Table 2. Relative error of intensity ratio with temperature.

온도	23℃	40℃	55℃	65℃	77℃
상대 오차	3.36%	3.39%	3.35%	3.12%	2.43%

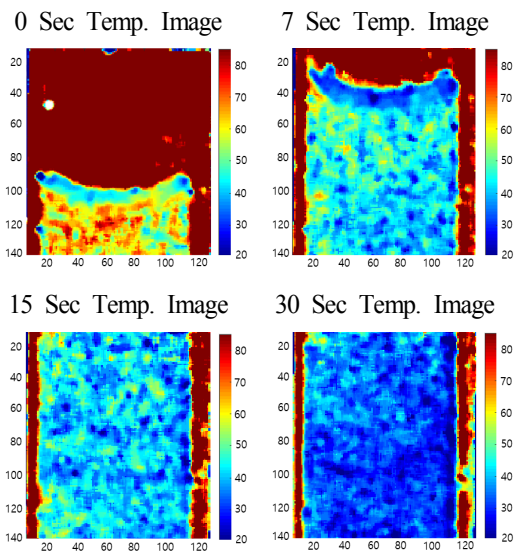


Fig 9. Demonstration of temperature measurement.

3.5 온도측정시연

(Sr,Mg)₂SiO₄:Eu²⁺인광입자를 사용하여 액체의 온도장 측정 가능성을 시연하기 위해 물을 가열한 후 차가운 액적을 주입하여 액체의 온도장 변화를 관찰하였고, 이를 Fig.9에 나타내었다. 40 mL의 큐벳에 담긴 77℃의 약 10 mL 가량의 가열된 현탁액에, 상온에 놓인 23℃의 현탁액 약 30mL를 약 15초 동안 주사기를 이용하여 큐벳의 입구에서 간헐적으로 떨어뜨려 주었고, 최종적인 물의 온도는 약 38℃였다. 이때 바깥으로 손실된 열이 없다고 가정하여 최종온도를 계산하면 약 36.5℃ 정도로 물의 부피 등의 측정 오차나 주입중 히터에 의한 열전달을 고려하였을 때 본 측정법의 가능성을 충분히 보여주었다 할 수 있다.

4. 결론

본 연구에서는 인광입자 (Sr,Mg)₂SiO₄:Eu²⁺로 현탁액을 만들고 액체와 입자의 온도가 같다고 가정하고 입자의 온도를 측정하여 액체의 온도장을 측정하고자 하였다. 본 기술의 상대오차는 고온에서 2.43%, 상온에서 3.36%로 다른 계측법에 견줄만 하며 온도 민감도 또한 저온부에서 0.65[%/℃], 고온부에서 0.95[%/℃]로 SMP 및 BAM, ZnO 인광입자⁷⁾와 비교 시 높은 온도민감도를 가지고 있다. 또한, 본 입자를 속도를 측정하기 위한 PIV의 입자로 사용할 수 있고, 본 실험장치에서 532 nm 레이저와 PIV 카메라를 한 대 추가함으로써 용이하게 속도와 온도 동시측정으로 확장할 수 있다는 측정법의 장점이 있으며, 본 기술의 오차 감소를 위한 추가적인 연구의 필요성도 충분하다. 본 연구에서 파악한 오차의 원인으로는 수농도의 영향이 가장 큰 것으로 보인다. 추후 연구에서는 분광기를 이용한 분산된 입자의 스펙트럼 측정, 필터 최적화를 통한 강도비의 온도민감도 증가 또는 수농도 영향 감소, 입자의 부유안정성 조절을 통한 수농도 조절과 신호 세기 증가, 마지막으로 물이 아닌 다른 액체를 이용하여 온도범위를 고온으로 늘리는 것이다.

후 기

이 논문은 2017년도 정부(교육부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(No. 2017R1D1A1B03031552).

REFERENCE

- 1) Alison, S. W., G. T. Gillies. 1997, "Remote thermometry with thermographic phosphors: Instrumentation and applications," *Review of Scientific Instruments* 68.7, pp.2615-2650.
- 2) Omrane, Alaa, et al. 2008, "Simultaneous 2D flow velocity and gas temperature measurements using thermographic phosphors," *Applied Physics B: Lasers and Optics* 92.1, pp.99-102.
- 3) Fond, B et al. 2012, "Simultaneous temperature, mixture fraction and velocity imaging in turbulent flows using thermographic phosphor tracer particles," *Optics express* 20.20, pp.22118-22133
- 4) Kim, Dong, et al. 2017, "Simultaneous measurement of temperature and velocity fields using thermographic phosphor tracer particles," *Journal of Visualization*, pp.1-15.
- 5) Lee, Hyunchang, et al. 2016, "Turbulent heat flux measurement in a non-reacting round jet, using BAM: Eu^{2+} ," *Applied Physics B* 122.7, pp.1-13.
- 6) Abram, C., Miriam, P., Beyrau, F. 2016, "Temperature field measurements in liquids using ZnO thermographic phosphor tracer particles," *Experiments in Fluids* 57.7, pp.1-14.
- 7) Fond, B., Abram, C., Beyrau, F., Pougin, M. 2019, "Investigation of the tin-doped phosphor $(\text{Sr,Mg})_3(\text{PO}_4)_2\text{:Sn}^{2+}$ for fluid temperature measurements," *Optical materials express* 802, Vol.9, No. 2.
- 8) Fond, B., Abram, C., Beyrau, F., Pougin, M. 2019, "Characterisation of dispersed phosphor particles for quantitative photoluminescence

measurements,"

- 9) Abram, C., Fond, B., Beyrau, F. 2018, "Temperature measurement techniques for gas and liquid flows using thermographic phosphor tracer particles," *Progress in Energy and Combustion Science* 64, pp93-156.