

## 광대역 CARS 분광기의 제작과 온도 측정의 정확도 분석\*

박승남 · 한재원 · 이은성 · 이충희

한국표준과학연구원

(1993년 5월 21일 받음)

펄스마다 전체 CARS 스펙트럼을 측정할 수 있는 광대역 CARS 분광기를 제작하였다. 이 분광기는 펄프광으로 Nd:Yag 레이저의 제 2 고조파를, 스톱스광으로는 모드없는 광대역 스톱스 레이저를 사용하였고, 이중 회전발분광기와 이에 설치된 다채널 광검출기로 구성되어 CARS 신호를 측정한다. 측정의 정확도를 높이고 좋은 곡선맞춤 결과를 얻기 위해 검출기 시스템의 슬릿함수를 측정하였으며 이 함수의 해석적인 함수형태를 결정하였다. 이 분광기의 온도측정 정확도는 CARS 스펙트럼을 곡선맞춤하여 얻은 온도와 열전대로 측정된 온도의 차이로 평가하였다. 이 장치의 온도측정 불확정도는 300 K에서 1300 K까지의 온도영역에서 1.5%이었다.

### I. 서 론

CARS(coherent anti-Stokes Raman scattering)가 발전되고 이 기술이 연소기체의 밀도와 온도측정에 유용하게 사용될 수 있는 이론적 기틀이 마련되면서 여러 종류의 연소진단에 응용한 결과들이 발표되었다.<sup>[1-5]</sup> CARS 분광기는 사용하는 스톱스(Stokes) 레이저의 선폭에 따라 두 종류로 나눌 수 있다. 주사형 CARS 분광기는 선폭이 좁은 스톱스 레이저의 파장을 주사하여 CARS분광을 측정하는 주사형과 측정하고자 하는 CARS 선폭에 비해 선폭이 넓은 스톱스 레이저를 사용하여 펄스마다 전체 스펙트럼을 측정하는 광대역 분광기로 나눌 수 있다. 주사형 CARS 분광기는 선폭이 좁은 스톱스 레이저를 광원으로 사용하여 분광선을 자세히 측정할 수 있으므로 기체분자의 충돌, 온도의 변화, 완충가스의 종류, 펌핑포화(pumping saturation)의 정도에 의한 분광선의 선폭변화<sup>[6-8]</sup>나 선폭이 등과 같은 기체의 물성연구에 주로 사용되지만 긴 주사시간이 소요되므로 정상상태에 있는 기체의 온도와 밀도측정에 응용이 제한되어 있다.<sup>[9-11]</sup> 그러나, 레이저 펄스마다 전체의 스펙트럼을 얻을 수 있는 광대역 CARS는 측정의 시간분해능을 높일 수 있으므로 난류연소처럼 온도가 급격히 변화하는 연소상태의 진단에 유용하게 사용되고 있다. 최

근에는 펄스마다 측정된 온도의 확률분포함수를 측정하여 난류연소를 진단하는 기술<sup>[12]</sup>이 개발되어 CARS 기술의 응용분야를 넓혀가고 있다.

1984년에 Eckbreth<sup>[3]</sup>등이 제작한 광대역 CARS 분광기의 정확도는 관 모양 전기로에서 확인한 결과 계통오차는 열전대와 비교했을 때 1253 K에서 100 K 이내이고 온도분포함수의 표준편차는 130 K로 측정되었다. 1985년 Pealat 등<sup>[13]</sup>의 연구 결과에 의하면 실온에서 1600 K까지의 온도영역에서 기준셀로 규격화하고 시간 평균한 스펙트럼으로 구한 온도와 열전대로 측정된 온도의 차이는 10~50 K로 최고온도에서 약 3%의 편차를 나타낸다. 또한 그들의 모의 실험에 의하면 표준편차의 20%는 광자단속잡음에서 기인한 것이었다. 1989년에 Lange 등<sup>[14]</sup>에 의해 발표된 장치는 80 Hz로 동작시켰을 때 300~1300 K 온도영역에서  $\pm 50$  K의 요동을 보이고 이 온도영역에서 열전대와 비교하면 25 K (최고온도에서 2%) 이내에서 일치한다. 1989년에 Snell 등<sup>[15]</sup>이 검출기의 비선형성과 유도라만펌핑 효과를 고려하여 열전대와 광선역전 방법으로 예혼합 화염의 온도를 확인한 결과 1577 K에서 20 K (1.3%) 이내에서 CARS로 측정된 온도와 일치하는 결과를 발표하였다. 이 연구 외에도 온도측정의 산란을 줄이고 측정의 정확도를 높이는 연구 결과들이 발표되었다.<sup>[16-18]</sup>

\*이 연구는 과학기술처의 1992년도 첨단요소과제의 연구비 지원으로 수행된 것임.

이 논문에서는 CARS 분광기로부터 온도를 구하는 원리를 간단히 설명하고 이미 발표한 주사형 CARS 분광기에 대한 연구결과<sup>[19,20]</sup>를 바탕으로 광대역 CARS 분광기를 제작한 내용을 기술하였다. 온도계산의 정확도를 높이기 위하여 분광기의 슬릿함수(slit function)를 측정하고 슬릿함수의 모양을 해석적으로 기술하였다. 열관(heat pipe) 전기로 속의 온도를 300~1300 K로 변화시키면서 CARS를 이용하여 측정된 온도의 반복도를 조사하고, 열전대로 측정된 온도를 비교하여 온도 측정의 정확도에 대하여 논의하였다.

## II. 광대역 CARS 스펙트럼과 온도계산

### 1. 광대역 CARS 스펙트럼과 규격화

CARS 신호의 세기는 펌프광의 세기  $I_1$ , 스톱스광의 세기  $I_2$ , 3차 비선형감수율  $\chi^{(3)}$ 로 다음과 같이 표현된다.<sup>[21]</sup>

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

여기서  $\omega_1$ ,  $\omega_2$ 는 각각 펌프광과 스톱스광의 각 진동수이다.

일반적으로 3차 비선형감수율  $\chi^{(3)}$ 는 다음과 같은 식으로 기술할 수 있다.<sup>[22]</sup>

$$\chi^{(3)} = \frac{i}{h} \sum_j \alpha_j \sum_k \alpha_k \Delta \rho_k^{(j)} [G]_{j,k}^{-1} \quad (2)$$

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

위 식에서  $j, k$ 는 라만분광의 천이에 해당하는 양자수,  $\alpha_j$ 는 편극율(polarizability),  $\Delta \rho_k^{(j)}$ 는 천이  $k$ 에 대한 준위 밀도,  $\delta_{jk}$ 는 크로니카 델타(Kronecker delta),  $\gamma_{jk}$ 는 선폭행렬의 비대각요소,  $\Delta_j$ 는 선폭행렬의 허수항에서 결정되는 현편이,  $\Gamma_j$ 는 독립분광선의 선폭으로  $\Gamma_j = -2 \sum_{k \neq j} \gamma_{kj}$   $\gamma_{kj}$ 로 표현된다. (3)식 오른쪽의 마지막 항인 선폭행렬의 비대각행렬요소를 무시하면 (2)식은 고립분광선모델(isolation line model)인 아래의 식이 된다.

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

여기서  $\chi^{NR}$ 은 공명진동상태의 분자나 원충가스 전자의 비선형편극 때문에 생기는 비공명항으로 파장에 무관하게 일정하다.

(1)식으로 표현된 CARS 스펙트럼을 실험에 사용한 레이저 선폭을 고려하여 다시 기술하면, 레이저선폭과

비선형감수율의 휘감기적분(convolution)으로 아래와 같이 표현된다.<sup>[21]</sup>

$$I_3(\omega_3) \propto \int d\omega_1 I_1(\omega_1) \int d\omega_2 I_2(\omega_3 - \omega_1 + \omega_2) I_2(\omega_2) |\chi^{(3)}(\omega_1 - \omega_2)|^2 \quad (5)$$

광대역 CARS의 경우 스톱스레이저의 분광분포는 단색화 장치의 분산능력과 다채널광검출기의 감응특성에 의해 결정되는 슬릿함수로 대체된다. 더구나  $\Delta \omega_2 \gg \Delta \omega_1$  이므로 CARS 신호의 분광분포는

$$I_3(\omega_3) \propto \int d\omega'_3 T(\omega_3 - \omega'_3) \int d\Delta I_1(\omega'_3 - \Delta) I_2(\omega_1^{(0)} - \Delta) |\chi^{(3)}(\Delta)|^2 \quad (6)$$

로 표현된다.<sup>[22]</sup> 여기서  $\omega_1^{(0)}$ 는 펌프레이저의 중심파장이고  $\Delta$ 는 공명파장에서 벗어파장이고  $T$ 는 이중 회전 발분광기와 다채널 광검출기로 구성된 검출기 시스템의 슬릿함수이다.

스톱스광  $I_2$ 의 선폭이 펌프레이저와 슬릿함수의 선폭보다 훨씬 넓고 천천히 변하는 함수이므로 (6)식의 휘감기적분에서  $I_2$ 는 적분 밖으로 나올 수 있다. 따라서 발생된 CARS 신호의 세기는

$$I_3(\omega_3) \propto I_2(\omega_1^{(0)} - \omega_3) \int d\omega'_3 T(\omega_3 - \omega'_3) \int d\Delta I_1(\omega'_3 - \Delta) |\chi^{(3)}(\Delta)|^2 \quad (7)$$

로 표현될 수 있다. 스톱스광으로 사용하는 광대역 색소레이저의 세기가 파장에 따라 다르므로 CARS 신호의 모양에 변형이 생기는데 이를 보상하여야 한다. 이를 위하여 공명(진동모드)이 CARS 신호를 측정하는 구간에서 가까이 있지 않은 기체(아래에서 기준셀로 부름)의 CARS 신호를 측정하고 이것을 (7)식의 CARS 신호에서 나누어 준다. 기준셀에서 나오는 CARS 신호의 세기  $I_{NR}$ 은  $\chi^{(3)}(\Delta)$ 가  $\chi^{NR}$ 로 일정하고, (7)식의 휘감기적분은  $\omega_3$ 에 무관하여 펌프레이저 분포함수와 슬릿함수의 적분은 상수가 되므로

$$I_{NR}(\omega_3) \propto |\chi^{NR}|^2 I_2(\omega_1^{(0)} - \omega_3) \quad (8)$$

가 된다. (7)식의 CARS 신호에서 기준셀의 신호 (8)식을 나누면 규격화된 신호를 얻을 수 있으며 다음의 식으로 표현된다.

$$\frac{I_3(\omega_3)}{I_{NR}} \propto \int d\omega'_3 T(\omega_3 - \omega'_3) \int d\Delta I_1(\omega'_3 - \Delta) |\chi^{(3)}(\Delta)|^2 \quad (9)$$

따라서 온도변화에 대한 기체의 비선형감수율을 이론적으로 계산하고 이것을 펌프레이저의 분광분포와 슬릿함

수로 휘감기적분하면 이론적인 CARS 스펙트럼이 얻어진다. 이렇게 계산된 스펙트럼과 실제 실험에서 구한 스펙트럼을 비교하면 온도를 얻을 수 있다.

**2. 온도계산**

실험에서 구한 CARS 스펙트럼으로부터 온도를 구하기 위해서는 매번 (9)식을 사용하여 이론적인 스펙트럼을 계산하는 것은 매우 번거롭고 많은 시간이 소요된다. 이런 문제를 극복하기 위해 실험에서 사용한 펌프광의 선폭과 측정장치의 슬릿함수를 측정하고 이것을 (9)식에 대입하여 50 K 온도간격으로 나누어 이론적인 스펙트럼의 라이브러리(library)를 만들어 사용한다.

스펙트럼의 라이브러리는 PC용 CARSPFIT(version 03-30-92, Sandia National Lab., USA)를 사용하여 200 K 에서부터 2100 K까지 50 K 간격으로 계산하였다. 이 계산에서는 지수함수 에너지차 모델(exponential energy gap model)과 Kataoka-Teets<sup>[23,24]</sup>의 휘감기적분으로 계산하였다. 이 라이브러리 스펙트럼을 프로그램 FTCARS (PC version, Sandia National Lab., USA)를 사용하여 실험에서 얻은 스펙트럼과 곡선맞춤하여 온도를 결정하였다. FTCARS는 중간 온도의 스펙트럼을 라이브러리로부터 보간법으로 계산한다. 곡선맞춤에서는 광자의 단속잡음(shot noise)에 따라 다르게 무게를 준  $\sigma^2$  (실험과 이론 편차의 제곱을 실험값의 제곱으로 나누어 전체 데이터에 대해서 합한 값)가 최소가 되는 곡선을 결정하여 맞춤변수(온도)를 알아낼 수 있다. 보통 한 실험데이터를 곡선맞춤하여 온도를 구하는데 소요되는 시간은 IBM 호환 PC(CPU i80486DX-33 MHz)를 사용할 때 1 초 이내이다.

**III. 광대역 CARS 분광기의 제작**

광대역 CARS 분광기는 두 대의 레이저, 레이저광을 시료의 조사시키는 광학계와 시료에서 발생하는 CARS 신호를 분광시키는 단색화장치와 다채널광검출기로 구성되어 있다. 두 레이저광을 시료에 조사시키는 장치의 구성은 이미 발표한 주사형 CARS와 거의 같다.<sup>[19]</sup> 펌프광은 Nd:Yag 레이저 (Quantel 660-10)의 제 2 차 고조파를 사용하였는데, 이 레이저는 10 Hz의 펄스로 동작되며 시간폭은 7~8 ns이고 펄스 마다 에너지는 300 mJ이다. 이 레이저를 다중모드로 동작시킬 때, 보통 사용하는 동작 전압 범위에서 선폭은  $1.0 \text{ cm}^{-1}$ 로 측정되었다.

광대역 CARS 분광기에서는 전체의 CARS 스펙트럼을

보기 위해서 선폭이 넓은 스톡스 레이저가 필요하다. 스톡스 레이저로는 다중모드로 동작되는 색소레이저가 주로 사용되었는데 모드 사이의 모드다툼에 의해 CARS 스펙트럼에 큰 잡음이 발생하였다. 최근 증폭 자발 방출(ASE; amplified spontaneous emission)을 사용하여 모드잡음을 줄인 연구가 보고되었다.<sup>[25]</sup> 따라서 이 연구에서는 그림 1에서 보인 장치로 모드 없는 레이저광을 발생시켜 스톡스광으로 사용하였다. 일차 증폭기의 색소셀에서 발생한 증폭 자발 방출광을 거울로 반사시켜 증폭시킨 후 광속확대기를 통해 이차 증폭기에서 다시 증폭한다. 레이저의 선폭을 줄이고 싶을 때는 거울 대신에 회절격자를 사용하였으며, 회절격자를 사용하면 파장을 변화시킬 수 있다. 그림 2는 색소 Kition Red 620  $7.5 \times 10^{-5}$ 몰에 색소 R640를 더 넣으면서 증폭 자발 방출의 파장과 에너지 변화를 측정 한 것이다. R640의 농도가  $5 \times 10^{-5}$ 몰일 때 펄스 당 에너지는 8 mJ이고 파장은 607 nm로 질소의 CARS 신호를 측정하기에 알맞다.

BOXCARS 위상점합 조건으로 실험하기 위해 펌프광을 둘로 나누었으며, 두 펌프광의 상관관계(correlation)을 줄이기 위해 약 5 cm의 거리지연을 두었다. 측정부

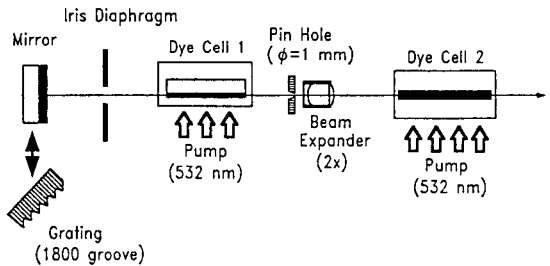


그림 1. A modeless laser generating amplified spontaneous emission.

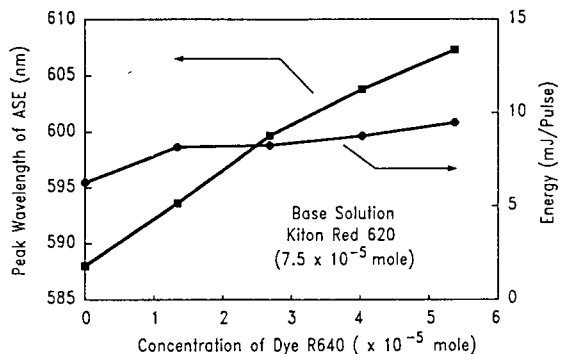


그림 2. Change of the peak wavelength and energy of ASE by adding dye R640.

위로 입사되는 두개의 펄프광과 스톡스광은 렌즈( $f=50$  cm)를 사용하여 집중하였는데 렌즈 면에서 세 광의 지름은 약 2 mm였다. 두 펄프광의 중심 사이의 간격은 5~6 mm이고, 건조한 알곤 기체를 슬릿 모양의 노즐로 불면서 측정할 CARS의 공간분해능은 3~4 mm였다. 펄프광과 스톡스광 모두 수평으로 편광 되었고, CARS 신호도 같은 편광으로 측정하였다. CARS 신호는 초점거리 1 m의 이중 회전발분광기(Jovin Yvon U1000)로 분산시킨 후 다채널 광검출기(Princeton Instruments Co. ST120)로 측정하였다. 이 다채널 광검출기는 MCP(microchannel plate)영상증폭기와 실리콘 어레이 검출기가 광섬유로 결합된 것으로 1024개의 화소로 구성되어 있으며 위의 분광기에 설치하면 화소 사이의 파장 간격은  $0.42 \text{ cm}^{-1}$ 이다. 이 장치의 제어와 데이터 수집은 ST-120 소프트웨어(version 2.0)를 IBM AT에서 실행시켜 이루어진다.

#### IV. 실험결과와 논의

앞의 이론에서 언급한 것 처럼 CARS 신호를 규격화하기 위해서는 기준셀의 비공명신호를 측정하여야 한다. 그림 3은 3 기압의 알곤 가스를 셀 속에 넣고 측정할 알곤의 비공명향에 의한 CARS 스펙트럼이다. 폭이 좁은 신호는 회절격자를 사용하여 스톡스레이저를 구성할 때 발생하는 증폭 자발 방출을 측정할 결과이고, 폭이 넓은 신호는 거울을 사용하여 얻은 결과로 각각의 선폭은  $40, 120 \text{ cm}^{-1}$ 이다.

이중 회전발분광기와 다채널광 검출기로 구성된 측정 장치의 슬릿함수는 단일모드 헬륨-네온 레이저 광을 렌즈( $f=5$  cm)를 이용하여 슬릿위치에 집중시킨 후 퍼지게하여 측정하였다. 측정할 슬릿함수는 그림 4와 같이 좌우가 비대칭이고 반치폭(FWHM)은  $1.3 \text{ cm}^{-1}$ 이며, 가우스와 로렌츠 함수의 휘감기적분 형태인 보이그(Voigt)함수로

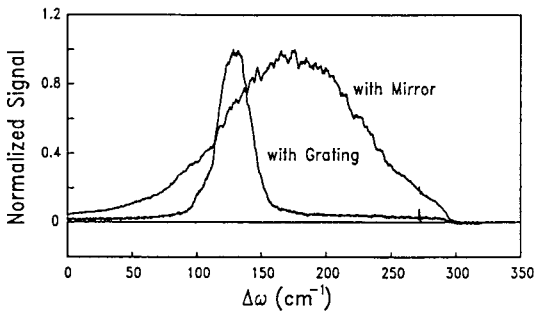


그림 3. Nonresonant CARS spectrum of a reference cell filled with 3 atm argon.

잘 표현되었다. 그림 4에 보이는 슬릿함수는 왼쪽은 가우스 선폭이 0.95, 로렌츠 선폭은  $0.4 \text{ cm}^{-1}$ , 오른쪽은 가우스 선폭이 0.75, 로렌츠 선폭은  $1.2 \text{ cm}^{-1}$ 인 비대칭 보이그함수로 곡선맞춤하였다.

그림 5(a)는 실온 293 K의 대기 중에서 측정할 질소의 CARS 분광을 앞에서 측정할 비대칭 보이그함수를 슬릿함수로 사용하여 FTCARS로 곡선맞춤한 결과이다. 온도는 292 K로 계산되었고, 곡선맞춤의 좋은 정도를 나타내는 2는 0.02로 전 영역에서 좋은 맞춤 결과를 보이고 있다. 이 때 슬릿함수를 같은 반치폭을 가진 가우스함수( $\text{FWHM}=1.3 \text{ cm}^{-1}$ )로 대체하여 곡선맞춤한 결과가 그림 5(b)이다. 계산된 온도는 346 K,  $\chi^2$ 는 0.15이며

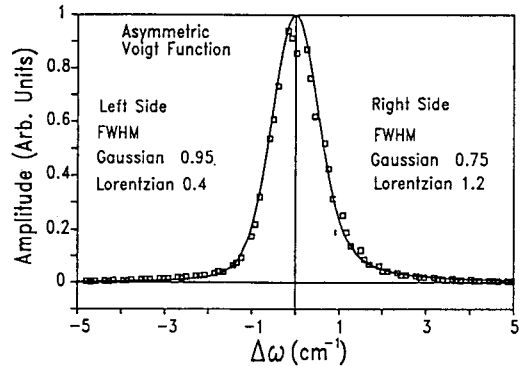


그림 4. Measured slit function fitted with an asymmetric Voigt function.

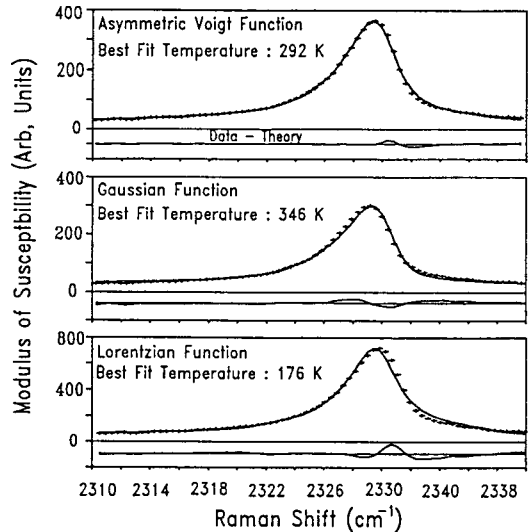


그림 5. Results of fitting a CARS spectrum at room temperature (293 K) with several slit functions noted in the figure.

라만분광의 Q-가지(branch)의 양 끝에서 잘 맞지 않는다. 그림 5(c)는 슬릿함수를 로렌츠함수(FWHM = 1.3 cm<sup>-1</sup>)로 기술하여 계산한 결과로 온도는 176 K,  $\chi^2$ 는 0.13이며 라만편이(Raman shift)가 2330 이상인 영역에서 잘 맞지 않는다.

이와 같이 슬릿함수의 모양은 온도계산에 큰 영향을 주므로 정확한 온도측정을 위하여 실험장치의 슬릿함수를 측정하여 사용하는 것이 바람직하다. 측정된 슬릿함수는 회전발분광기 앞의 집광렌즈의 초점위치가 맞지 않는 경우나 정렬을 바꾼 경우 슬릿함수는 심하게 달라질 수 있는데 이런 경우에는 실온에서 측정된 CARS 스펙트럼을 원래의 슬릿함수를 이용하여 온도를 계산해 보면 슬릿함수의 변화정도를 예측할 수 있다.

제작한 분광기의 온도측정 정확도는 측정된 온도의 반복도와 열전대로 측정된 온도와 차이로 평가하였다. 사용한 전기로<sup>[26]</sup>는 나트륨을 작동매질로 쓰는 열관(heat pipe)를 사용하여 중심부의 온도구배를 최소로 줄일 수 있도록 설계된 것으로 양쪽이 뚫려있어, 레이저를 관 내부로 통과시켜 관의 중심부에 있는 질소기체의 CARS 분광을 측정하였다. 전기로 가열부의 중심에 R형(Pt-Rh 13%/Pt)열전대의 접점이 오도록 설치하여 전기로 속 공기의 온도를 측정하였다. 열전대로 측정된 기온의 불확정도는 전기로의 안정도, 전기로 내부의 온도구배, 열전대의 온도측정 불확정도를 고려하면 실온에서 0.5% 이내이며, 1300 K에서 0.3% 이내이다. 전기로의 온도를 실온에서 1300 K까지 약 100 K 간격으로 올리면서 질소의 CARS 스펙트럼과 3 기압의 알곤이 채워진 셀의 비공명항에 의한 CARS 신호를 측정하고, 이론의 (9)을 이용하여 규격화하였다. 각 온도에서 50회 누적한 스펙트럼(측정의 시정수는 5초)을 10개 측정하여 각각의 온도를 계산하고 평균과 표준편차를 계산하였다. 표준편차를 반복도로 보고, 평균을 열전대의 온도와 비교하여 정확도를 확인하였다.

그림 6은 1272 K에서 10회 반복측정하여 계산한 온도를 보인 것으로 표준편차는 13 K로 평균온도 1269 K와 표준편차 이내에서 일치하는 결과를 보이고 있다. 그림 7은 열전대의 온도가 1272 K일 때 곡선맞춤하여 온도가 같은 값으로 측정된 스펙트럼의 맞춤결과를 보인 것으로 전체적으로 잘 일치하고 있다. 그림 8은 CARS와 열전대로 측정된 온도의 차이를 보인 것이다. 데이터 점의 오차표시선은 표준편차를 그린 것으로 두 온도의 차이는 CARS로 측정된 온도의 표준편차 이내에서 잘 일치하고 있다. 즉, CARS와 열전대로 측정된 온도의 차이는 300 K에서 800 K까지의 온도영역에서 1.5%, 800 K에서 1300

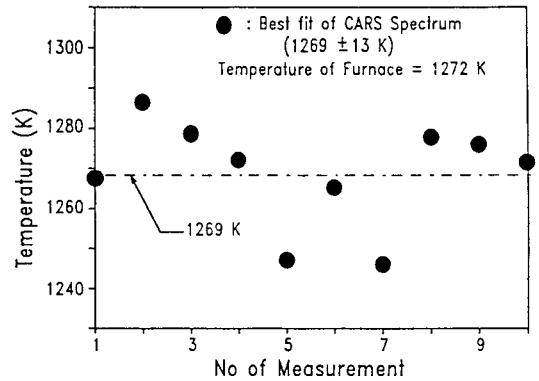


그림 6. Repeatability of CARS temperature measurement at 1272 K.

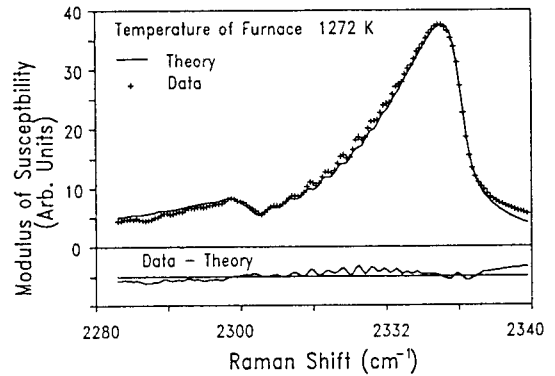


그림 7. A typical fitting result of CARS spectrum at 1273 K. The best-fit temperature of the CARS spectrum is 1272 K.

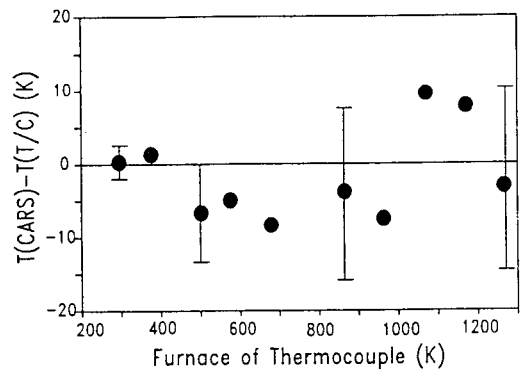


그림 8. Temperature difference between the best-fit temperature of the CARS spectrum and temperature of thermocouple reading.

K까지는 1% 이내이다. 열전대로 측정된 기온의 불확정도는 최대 0.5% 이내이므로 1~1.5% 이상의 온도차이는 CARS 측정에서 기인한 것으로 볼 수 있다. 스펙트럼을 곡선맞춤하여 온도를 계산할 때 맞춤변수의 초기값을 달리하면 온도가 다르게 계산되는데 이것을 계산에서 발생하는 오차로 볼 수 있는데 계산 오차는 측정된 온도영역에서 2K 이내이다. 그림 8에서 볼 수 있는 것 처럼 CARS와 열전대로 측정된 온도의 차이는 온도에 따라 어떤 특별한 경향을 보이지 않고 있으며 측정의 표준편차 이내이다. 따라서 그림 8에 보이는 온도오차는 우연오차(random error)로 볼 수 있다.

이 우연오차의 원인은 광자단속잡음, 스톱스 레이저의 분광분포 변화, 레이저광의 세기나 분광의 공간분포변화와 두 레이저광의 시간분포 변화에 따른 잡음 등을 들 수 있다.<sup>[13,17]</sup> 이 장치의 정확도는 CARS 온도측정의 정확도 분석을 주로 다룬 Pealt<sup>[13]</sup>의 1985년도 연구결과보다 향상된 것이고 최근까지 가장 정확도가 높은 것으로 발표한 Snell<sup>[15]</sup>의 연구결과와 거의 일치하는 좋은 결과를 보이고 있다. Snell의 연구 결과에 의하면 검출기의 비선형성과 유도 라만편평의 발생이 CARS 온도측정에 오차를 주는 것으로 지적되었다. 본 연구에서 사용한 검출기의 비선형성에 의한 온도측정 오차를 확인하기 위해 실온의 스펙트럼들을 신호세기를 줄이면서 측정된 후 규격화하여 비교한 결과 신호세기에 관계없이 일치하였다. 규격화된 각 스펙트럼을 곡선맞춤하여 얻은 온도값의 요동 크기는 실온에서 온도측정의 반복도 이내이므로 무시할 수 있었다. 유도라만편평에 의한 준위밀도의 변화가 실온의 CARS 스펙트럼에서 관측되지 않았는데 이는 Snell이 지적한 것 처럼 이 실험에서 사용한 위상접합 방법이 Snell이 사용한 USED BOXCARS 보다 라만편평에 대한 CARS 신호 발생율이 높기 때문으로 생각된다. 한편 이 장치의 정확도가 기존의 연구결과에 비해 약간 향상된 것으로 측정되었는데 이것은 증폭 자발 방출광을 스톱스 레이저로 사용할 경우 광대역레이저보다 CARS 스펙트럼의 잡음이 줄어드는 연구결과와 깊은 관련이 있는 것으로 생각된다.<sup>[25]</sup>

### V. 결 론

Nd:Yag 레이저의 제 2 고조파와 광대역 모드 없는 레이저를 광원으로 사용하고 이중 회전분광기에 설치된 다채널 광검출기로 분광된 CARS 스펙트럼을 레이저 펄스마다 측정할 수 있는 광대역 CARS 분광기를 제작하였다. 측정의 정확도를 높이고 좋은 곡선맞춤 결과를

얻기 위해 검출기 시스템의 슬릿함수를 측정하였으며 이 함수의 해석적인 함수형태를 결정하였다.

이 분광기의 온도측정 정확도는 CARS 스펙트럼을 곡선맞춤하여 얻은 온도와 열전대 온도눈금의 차이를 측정하여 평가하였다. 그 결과 이 장치의 온도측정 불확정도가 300 K에서 부터 1300 K까지 1.5%였다. 측정의 불확정도를 더 줄이기 위해서는 스톱스 레이저의 분광분포를 안정화시켜 규격화한 스펙트럼의 재현성을 더욱 높이고, 편광 CARS와 같은 기술을 사용하여 비공명신호를 제거하므로써 곡선맞춤에서 발생하는 오차를 줄 수 있을 것으로 생각된다. 앞으로 이 분광기는 정상상태의 연소진단에 응용할 수 있을 뿐만 아니라 레이저 펄스마다 측정되는 온도의 분포함수를 조사하면 난류연소의 진단에 응용할 수 있을 것이다.

### 감사의 말씀

이 연구를 하는 동안 여러가지 장치를 제작하여 준 김봉학씨께 감사를 드립니다. 특히 측정할 때 많은 도움을 준 서울대학교 기계공학과와 강경태씨, 단국대학교 화학과의 최창열씨께 깊은 감사를 포함합니다.

### 참 고 문 헌

- [1] P. Regnier, J. P. Taran, Appl. Phys. Lett. **23**, 240 (1973).
- [2] F. Moya, S. A. J. Druet, J. P. Taran, Opt. Commun. **13**, 169 (1973).
- [3] A. C. Eckbreth, G. M. Dobbs, J. H. Stufflebeam, P. A. Tellex, Appl. Opt. **23**, 1328 (1984).
- [4] T. J. Anderson, G. M. Dobbs, A. C. Eckbreth, Appl. Opt. **25**, 4076 (1986).
- [5] R. J. Hall, L. R. Boedeker, Appl. Opt. **23**, 1340 (1984).
- [6] M. L. Koszykowski, R. L. Farrow, R. E. Palmer, Opt. Lett. **10**, 478 (1985).
- [7] R. P. Lucht, R. L. Farrow, J. Opt. Soc. Am. **B5**, 1243 (1988).
- [8] L. A. Lucht, R. L. Palmer, J. Opt. Soc. Am. **B3**, 1164 (1986).
- [9] R. L. Farrow, R. Trebino, R. E. Palmer, Appl. Opt. **26**, 331 (1987).
- [10] R. L. Farrow, P. L. Mattern, L. A. Rahn, Appl. Opt. **21**, 3119 (1982).
- [11] R. L. Farrow, R. P. Lucht, L. A. Rahn, J. Opt. Soc. Am. **B4**, 1241 (1987).

- [12] D. Bradley, et al., Measurement of Temperature PDF in turbulent Flames by CARS Technique, 24-th Symposium (International) on Combustion, in Brisbane, Australia, 1992.
- [13] M. Pealat, P. Bouchardy, M. Lefebvre, J. P. Taran, *Appl. Opt.* **24**, 1012 (1985).
- [14] B. Lange, M. Noda, G. Marowsky, *Appl. Phys.* **B49**, 33 (1989).
- [15] D. R. Snelling, G. J. Smallwood, T. Parameswaran, *Appl. Opt.* **28**, 3233 (1989).
- [16] D. R. Snelling, R. A. Sawchuk, G. J. Smallwood, *Appl. Opt.* **23**, 4083 (1984).
- [17] D. R. Snelling, R. A. Sawchuk, R. E. Mueller, *Appl. Opt.* **24**, 2771 (1985).
- [18] D. R. Snelling, G. J. Smallwood, R. A. Sawchuk, *Appl. Opt.*, **28**, 3226 (1989).
- [19] 한재원, 박승남, 이은성, 이충희, *응용물리*, **4**, 314 (1991).
- [20] 박승남, 한재원, 이충희, *응용물리*, **5**, 9 (1992).
- [21] R. J. Hall, A. C. Eckbreth, in *Laser Applications*, edited by J. F. Ready and R. K. Erf, Eds. p 213 (Academic Press Inc., Orlando, 1984).
- [22] R. J. Hall, J. F. Verdick, A. C. Eckbreth, *Opt. Commun.*, **35**, 69 (1980).
- [23] H. Kataoka, S. Maeda, C. Hirose, *Appl. Spectrosc.*, **36**, 565 (1982).
- [24] R. E. Teets, *Opt. Lett.* **9**, 226 (1984).
- [25] P. Snowdon, S. M. Skippon, P. Ewart, *Appl. Opt.*, **30**, 124 (1991).
- [26] 박승남, 차동진, 이충희, *새물리*, **27**, 563 (1987).

### Construction of Broadband CARS Spectrometer and Uncertainty Analysis of Temperature Measurement

Seung Nam Park, Jae Won Hahn, Eun Seong Lee, and Chunghi Rhee  
*Korea Research Institute of Standards and Science, Taejon 305-340, Korea*

(Received: May 21, 1993)

A broadband CARS system is constructed for shot by shot measurement of a full CARS spectrum, which consists of a frequency doubled Nd:Yag laser, broadband mode-less laser and optical multi-channel analyzer installed in a double grating monochromator. To increase the accuracy of CARS temperature measurement and get better the fitting goodness, we have measured the slit function of the detection system and determined the analytical functional form of the slit function. Accuracy of the CARS system for temperature measurement is evaluated from the difference between the best-fit temperature of CARS spectrum and temperature of thermocouple reading. The uncertainty of the temperature measurement is found to be less than 1.5% in temperature range from 300 K to 1300 K.