Journal of the Korea Academia-Industrial cooperation Society
Vol. 18, No. 1 pp. 592-598, 2017

https://doi.org/10.5762/KAIS.2017.18.1.592
ISSN 1975-4701 / eISSN 2288-4688

고온 광학특성 평가 기법

진두한[1], 정경석[2*]
[1]한국기술교육대학교 메카트로닉스공학부, [2]한국기술교육대학교 기계공학부

Estimation of Optical Properties under High Temperature Conditions

Doo-Han Jin[1], Kyung-Seok Jeong[2*]
[1]**Department of Mechatronics Engineering, Korea University of Technology and Education**
[2]**Department of Mechanical Engineering, Korea University of Technology and Education**

요 약 적외선 투과 특성을 이용하여 광학 창 등으로 사용되는 세라믹 재료들은 광학적 특성이 잘 공개되어 있지 않다. 통상적으로 사용되는 굴절률 시험기를 이용하여 고온 세라믹 재료의 굴절률을 측정하는 것은 매우 어렵기 때문에 특별한 방안이 도입되어야 한다. 본 연구에서는 간접적인 방법을 통해 고온 조건에서 세라믹 재료의 광학특성을 평가하는 실용적인 방법을 제시하고자 한다. 먼저 평가대상인 세라믹 재료 샘플을 요구되는 고온 조건을 유지하기 위한 시스템을 제작하여 광분광기에 장착하였다. 이 시스템을 이용하여 온도를 변화하며 시료 온도에 따른 투과율을 측정하였다. 이렇게 측정된 투과율 데이터는 Sellmeier 분산식을 적용하는 광학 시뮬레이션 모델에 적용되어 굴절률 자료를 산출하는데 사용된다. 이 시뮬레이션 모델은 시행착오법을 이용하여 Sellmeier 분산식에 포함되는 변수들을 찾는데 이용된다. 이를 이용하여 굴절률을 계산하며 그 값을 이용하여 다시 투과율을 계산하고 그 결과를 측정된 투과율과 비교하여 그 결과가 일치할 때까지 반복하여 그 온도에서 재료의 변수로 정하였다. 이 방법을 사파이어 재료에 적용하여 그 결과를 상온에서 공개 데이터와의 비교를 통해 검증하였다.

Abstract A method for estimating the optical characteristics of ceramic materials under high temperature conditions has been applied and evaluated. For that purpose, an interface system combined with a photo-spectrometer was made to keep the samples at the required high temperature. The transmittance of the samples was measured at various temperatures. The measured transmittance data was used to estimate the refractive index using an optical simulation model in conjunction with the Sellmeier equation. The Sellmeier equation parameters were selected by trial-and-error when the transmittance recalculated using the estimated refractive index was compared with the measured transmittance. Furthermore, the estimated refractive indices were checked by a comparison with the reference data at some typical wavelengths at room temperature.

Keywords : Ceramic materials, refractiveindex, Sellmeier equation, trial-and-error, transmittance

– 기호 –

β_{abs} : 흡광계수
λ : 광의 파장
$k(\lambda)$: λ에서 허수부 굴절률
$n(\lambda)$: λ에서 실수부 굴절률
ν : 광의 파동수
T : 온도

본 논문은 민군겸용기술사업(15-CM-MA-02) 와 2016년도 한국기술교육대학교 교육연구진흥과제로 수행되었음.
*Corresponding Author : Kyungseok Jeong (Korea University of Technology and Education)
Tel: +82-41-560-7777 email: jks@koreatech.ac.kr
Received December 6, 2016 Revised (1st December 26, 2016, 2nd January 2, 2017)
Accepted January 6, 2017 Published January 31, 2017

1. 서론

유도무기 등에서 적외선 탐색창 용도 등으로 많이 사용되는 세라믹 재료들에 대한 많은 연구가 이루어졌고 실제 시스템에 적용되어 운용중인 것으로 알려져 있다. 시스템 적용을 위해서는 세라믹재료의 광학특성을 파악하는 것이 매우 중요하다. 그러나 이러한 재료들은 군사적인 목적으로 사용되는 경우가 많기 때문에 그 물성이나 광학적 특성이 거의 공개되어 있지 않아서 재료의 특성 자료를 독자적으로 확보해야만 하는 실정이다. 더욱이 이러한 적외선 투과 세라믹 재료들이 시스템에 적용되는 경우 초음속 비행에 따른 공력가열로 인해 고온 상태에 이르는 경우가 많다. 따라서 운용조건에서의 특성을 파악하기 위해서는 이들 재료의 고온특성을 평가하는 것이 매우 중요하다.

광학시스템 개발에 있어 가장 필요한 광학특성은 투과율과 굴절률이다. 특히 고온에서 재료의 굴절률 정보는 유도무기 시스템의 성능에 결정적 영향을 미치는 목표물의 탐지능력에 직접적으로 관련되기 때문에 그 중요성이 매우 높다. 그리고 시스템의 온도가 급격히 변화하는 경우에는 각 광학특성의 온도구배 정보 또한 매우 중요하다.

상온에서의 광학특성은 ellipsometer같은 기존의 상용 장비들을 이용하여 비교적 어렵지 않게 측정할 수 있다. 그러나 이런 장비들을 이용하는 경우에도 고온 재료의 굴절률을 측정하기 위해서는 시편의 온도를 변화시키기 위한 보조 시스템을 결합하여야 하는데, 공간이나 구성상 제약이 따를 뿐만 아니라 장비의 성능에 영향을 주지 않아야 하는 등 다양한 문제가 따르기 때문에 실제로 구현하기에는 많은 어려움이 있다.

이에 본 연구에서는 세라믹 재료의 고온 광학특성 데이터를 비교적 손쉽게 확보할 수 있는 방법을 제시하고, 사파이어 재료에 적용하여 그 방법의 타당성과 오차를 검증한다.

2. 고온 투과율측정

고온 조건에서 재료의 투과율을 측정하고, 이 자료를 이용하여 시행오차방법으로 광학 시뮬레이션을 수행한다. 먼저 측정된 투과율 자료를 입력으로 하여 굴절률 자료를 계산하고, 이때 얻어진 굴절률 자료를 입력하여 투과율을 계산한다. 이러한 과정을 반복하여 계산된 투과율이 측정 결과와 동일하게 되면 해당 재료의 해당 온도에서의 굴절률로 한다.

2.1 고온 투과율 측정 장치

고온 투과율을 평가하기 위하여 분광기에 결합하여 시편을 설정 온도로 가열할 수 있는 인터페이스를 제작하였다. 이 인터페이스는 가열된 시편으로 인해 측정 장치가 받게 되는 영향을 최소화하기 위하여 진공가열 방식을 채택하였으며, 시편을 최고 온도 600 ˚C 까지 가열이 가능하다. 인터페이스 내부를 진공상태로 유지하면서 측정 빔이 통과할 수 있도록 광경로에 고투과율 재질의 CaF_2창을 설치하였다. 측정에 사용된 분광기는 Thermo사 Nicolet 6700 FT-IR로 Beam Splitter와 Detector의 재질이 각각 Ge on XT-KBr과 DLaTGS w/KBr로 구성되었으며 그 측정범위는 350-12,000cm^{-1}이다.

시편을 가열하고 시험조건 온도로 유지하기 위하여 시편 홀더를 카트리지형 히터로 가열하는 방법을 사용하였으며, K타입 열전대를 설치하여 온도제어 입력신호로 이용하였다. 온도제어를 위해 고정도 전력제어기(Autonics SPC1-35)를 이용하였으며, 이를 통해 설정온도의 ±1°C 로 제어가 가능하다. 그림 1.은 진공가열 인터페이스 시스템의 모습이다.

2.2 고온 투과율 측정 결과

인터페이스 내에 두께 2mm인 시제 재료를 설치하고 온도를 상온으로부터 500 ˚C까지 100 ˚C 간격으로 상승시키며 측정한 투과율은 그림 2.와 같다. 온도가 증가함에 따라 파장 4.5μm 이상의 투과율이 감소하며 cut-off 파장 또한 짧아지는 특성을 볼 수 있다.

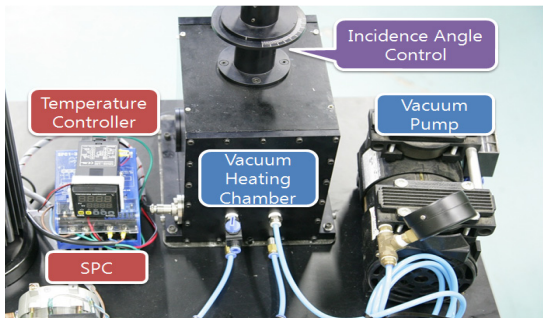


Fig. 1. Vacuum-heating interface to be installed in the photo-spectrometer

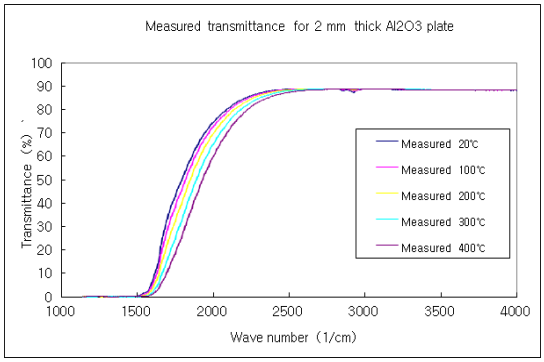


Fig. 2. Transmittance of a sapphire (2mm thick) with temperature variation (measured)

3. 고온 굴절률

3.1 세라믹 재료의 굴절률

측정된 재료의 투과율 데이터를 Sellmeier분산식에 적용하여 굴절률을 추정하였으며, 방법의 타당성은 상온에서의 이미 알려진 데이터와의 비교를 통하여 검증하였다.

복소수로 표현되는 재료의 광학 굴절률은 파장에 따라 달라지는 다양한 전자전이(electron transition), 격자진동(lattice vibration), 자유반송자 효과(free carrier effect) 등 다양한 기여 메커니즘에 의해 결정된다[1]. 고주파수 대역에서는 Urbach tail흡수 기구에 의해 영향을 받는다. 저주파수와 고주파수 대역에서는 재료의 불순물 또는 산란자(scatter)에 의해 흡수가 발생한다.

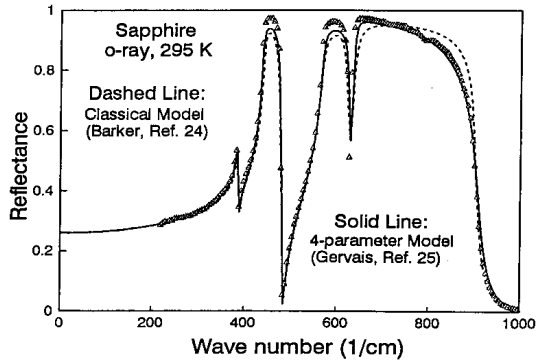


Fig. 3. Infrared spectrum of sapphire(Al_2O_3) with the use of three-parameter classic oscillator model of Barker[1] (dashed line) and the four-parameter model of Gervais[2] (solid line).

그림 3.은 사파이어 재료에 대한 Barker의 3변수 고전적 진동 모델[1]과 Gervais등의 4변수 모델[2]에 의한 적외선 스펙트럼을 보인 것이다.

Malitson 등[3]은 0.2 - 5μm의 파장범위에서 사파이어 재료의 굴절률을 측정하였으며, curve-fitting을 통해 파장과 굴절률(실수부)의 관계를 표현하는 식 (1)과 같은 Sellmeier분산식을 구하였다.

$$n(\lambda)^2-1=\frac{1.4313493\lambda^2}{\lambda^2-0.0726634^2}+\frac{0.65054713\lambda^2}{\lambda^2-0.1193242^2}+\frac{5.3414021\lambda^2}{\lambda^2-18.028251^2} \quad (1)$$

절연재료의 파동수 100부터 1000사이의 적외선 영역에서의 흡수(absorption at the infrared edge)는 멀티포논 흡수 기구가 관여함이 밝혀졌으며 이온 절연체 (ionic insulator)의 경우 흡광계수 식 (2)로 표현된다[4].

$$\beta_{abs}(\nu)=\beta_0\exp(-\gamma\frac{\nu}{\nu_o}) \quad (2)$$

여기서 파라미터 $\beta_0=184456\,cm^{-1}$, $\gamma=5.36$, $\nu_0=620\,cm^{-1}$으로 알려져 있다. 투명 영역에서의 흡광은 재료의 불순물 (impurity)과 결함 (defect)이 관여한다. 예를 들어 산화물(oxide)에 자주 존재하는 non-bonded OH가 파동수 3735cm^{-1}아래 대역에서 진동하고 흡수된다. 또한 광학 굴절률은 재료 온도에 따라 변하게 되며 Lange[5]은 파장 0.546μm에서의 $dn/dT=1.17\times10^{-5}/K$으로 계측한 바 있다.

3.2 고온 굴절률 추정 결과

그림 2.는 두께 2mm시편의 온도변화에 따른 투과율 계측 결과이다. 각 온도별 투과율 계측 곡선으로부터 복소굴절률을 추정하기 위해 실수부 굴절률$n(\nu)$은 식 (3)의 Sellmeier 식을 이용하였고, 허수부 굴절률 $k(\nu)$는 ionic insulator의 감쇠계수개형으로 식 (4)로 가정하여 추출하였다.

$$n(\nu)^2-1=\frac{a_1^2}{\lambda^2-b_1^2}+\frac{a_2\lambda^2}{\lambda^2-b_2^2}+\frac{a_3\lambda^2}{\lambda^2-b_3^2} \quad (3)$$

$$\beta_{abs}(\nu)=\frac{1}{4\pi\nu}\beta_0\exp\left(-\gamma\frac{\nu}{\nu_o}\right) \quad (4)$$

Table 1. Material constant of refractive index calculated at various temperature

R.I	symbol	unit	20℃	100℃	200℃	300℃	400℃
Real	a_1	μm	1.25958738	1.26674413	1.27390088	1.28105762	1.28821437
	a_2	μm	0.58549242	0.58549242	0.58549242	0.58549242	0.58549242
	a_3	μm	3.73898147	3.73898147	3.73898147	3.73898147	3.73898147
	b_1	μm	0.07992941	0.07992941	0.07992941	0.07992941	0.07992941
	b_2	μm	0.1193242	0.1193242	0.1193242	0.1193242	0.1193242
	b_3	μm	18.028251	18.028251	18.028251	18.028251	18.028251
Imaginary	β_0	1/cm	1200000	1200000	1200000	1200000	1200000
		-	1.55	1.55	γ 1.55	1.55	1.55
	ν_0	-	220	223	227	230	235

이러한 식들을 적용하여 굴절률을 변경해 가며 투과율을 계산하여 투과율 계측 결과와 가장 잘 일치하는 경우의 값들을 모델 파라미터로 설정한다.각 온도별 파라미터는 그림 4.와 같은 광학시뮬레이션 모델에 대하여 Synopsys사의 Lighttools S/W를 이용하여 시행착오방법으로 구하였으며 표 1.에 파라미터 값들을 정리하였다.

그림 5.는 표 1.의 파라미터와 식 (3)및 식 (4)를 이용하여 계산된 복소굴절률의 실수부와 허수부를 파동수 1000-4000cm^{-1}대역에서 나타낸 것이다.

그림 6.은 이렇게 추정된 복소굴절률을 이용하여 다시 투과율을 역 추정한 결과로 그림 2.의 투과율 계측결과와 일치함을 보여준다. 그림 7.은 측정값과 계산값을 확대하여 비교한 것으로, 광시뮬레이션 모델을 이용하여 구해진 복소굴절률을 이용하여 추정한 투과율 계산 결과가 측정결과와 일치하는 것을 볼 수 있다.

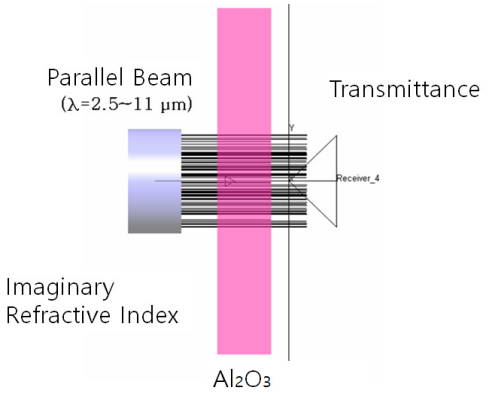
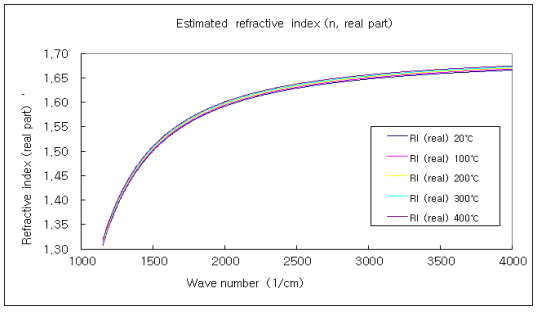
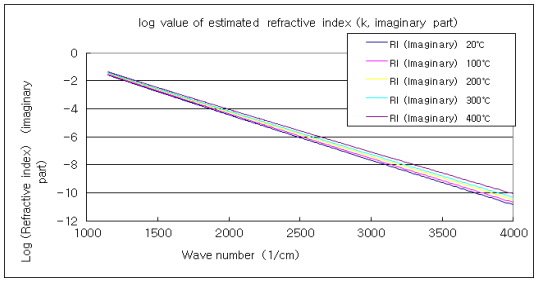


Fig. 4. Optical simulation model

광 시뮬레이션 방법에 의한 굴절률 추정의 타당성은 공개되어 있는 자료[6,7]중 몇 개의 파장에 대한 상온 굴절률과 비교를 통해 확인하였다. 표 2.는 참고 데이터와 시뮬레이션의 결과를 비교한 것으로 높은 정도의 신뢰성을 확인할 수 있다.



(a)



(b)

Fig. 5. Refractive index estimated using the measured transmittance.
(a) Estimated refractive index (n, real part)
(b) Log value of estimated refractive index (k, Imaginary part)

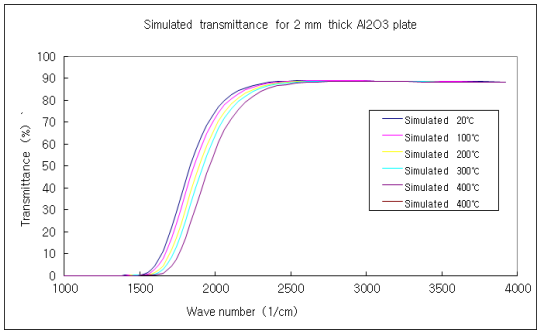
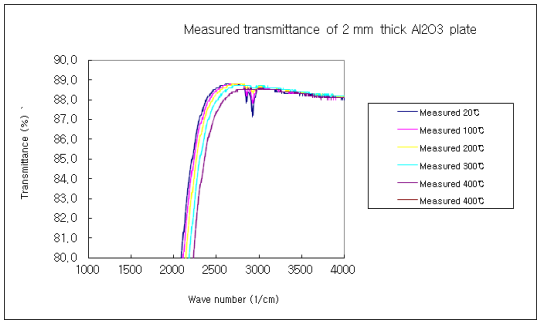


Fig. 6. Recalculated transmittance using the estimated estimated refractive index



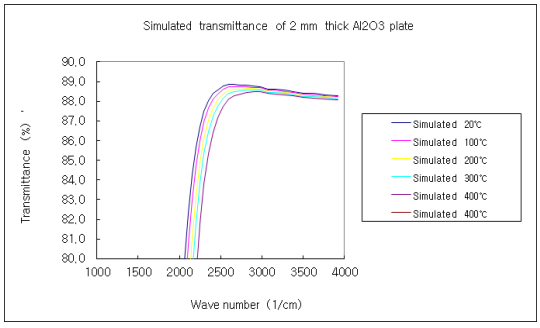
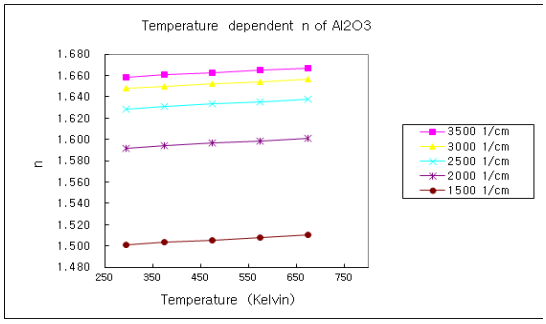


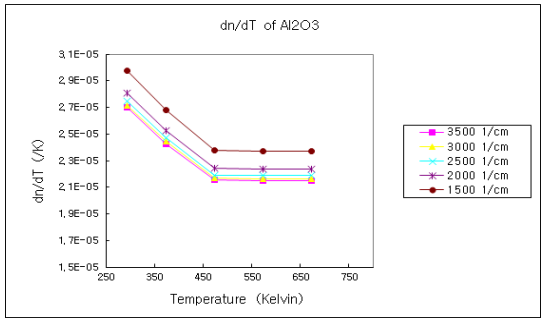
Fig. 7. Comparison of refractive index measured (upper) and estimated (lower)

Table 2. Comparison of measurement[17] and estimated result

Wavenumber(cm^{-1})	Measured	Estimated	Error(%)
3448	1.712	1.657	3.21
3030	1.701	1.648	3.11
2500	1.674	1.628	2.75
2326	1.658	1.618	2.41
2000	1.623	1.592	1.91



(a)



(b)

Fig. 8. Real part of refractive index $n(\nu, T)$ and temperature gradient $\partial n(\nu, T)/\partial T$ (a) $n(\nu, T)$ (b) $\partial n(\nu, T)/\partial T$

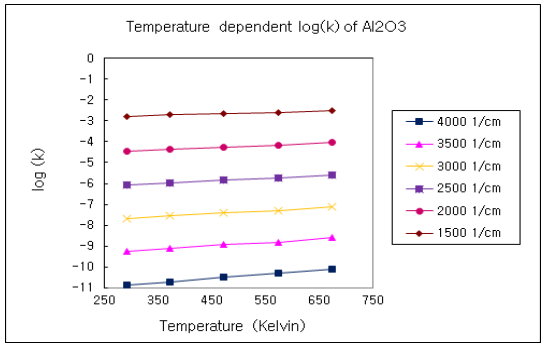
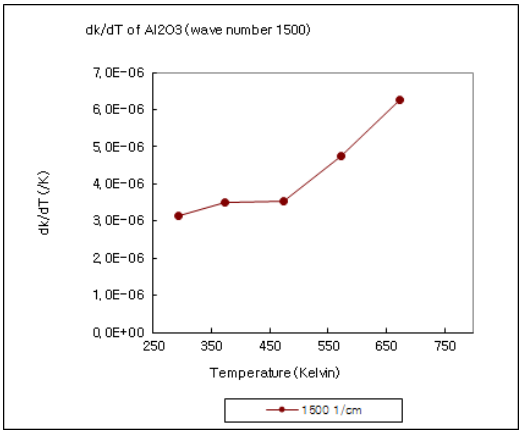


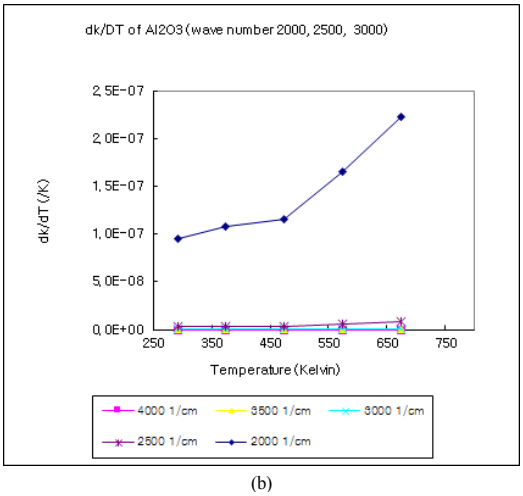
Fig. 10. Imaginary part of Refractive Index $\log k(\nu, T)$

그림 8. (a)는 실수부 굴절률 $n(\nu, T)$이며, (b)는 $\partial n/\partial T$의 변화이다. 상온으로부터 온도가 400K 상승 변화하는 동안 각 파동수에서 실수부 굴절률은 매우 완만하게 증가하는데, 증가율을 (b)에서 보면 $\partial n/\partial T$는 모든 파동수에서 점차 감소하다가 450 K 이상에서는 일정한 값으로 된다. 그림 9.는 복소굴절률 허수부 (extinction coefficient) $k(n, T)$를 로그값으로 나타낸 것이다. 400K 상승하는 동안 모든 파동수에서 $k(n, T)$

는 수배 증가하며, 파동수가 작아질수록 즉 적외선 파장이 길어질수록 다중포논 흡광의 영향으로 k가 큰 값을 가지며, 파동수 $2500cm^{-1}$부근에서는 결정결함으로 인해 약 10^{-6} 의 값이 된다. 또 파동수 $4000cm^{-1}$의 경우, k값은 $10^{-11}-10^{-10}$ 으로서 무시할 수 있을 만큼 작다. 그림 11.은 $\partial k(\nu,T)/\partial T$를 나타낸 것으로 (a)는 중적외선 영역인 $1500cm^{-1}$에서의 변화를 보인 것인데, 온도가 상승함에 따라 $\partial k(\nu,T)/\partial T$도 증가하는 경향을 볼 수 있다. (b)에서 파동수 $2000cm^{-1}$에서는 파동수 $1500cm^{-1}$에서의 기울기의 약 1/10의 크기이며, 파동수 $2500cm^{-1}$이상의 영역에서는 $\partial k(\nu,T)/\partial T$ 값이 온도의 변화에 무관한 것을 볼 수 있다.



(a)



(b)

Fig. 11. Temperature gradient $\partial k(\nu,T)/\partial T$
(a) wave number 1500
(b) wave number 2k, 2.5k, 3k, 3.5k, 4k

4. 결론

세라믹 재료의 고온 광학특성 데이터를 확보하기 위하여 온도변화에 따른 투과율을 측정하고, 그 결과를 이용하는 광 시뮬레이션 모델에 의한 굴절률 추정방법을 개발하는 연구를 통해 다음의 결론을 얻을 수 있었다.

1) 시행오차방법을 이용하여 Sellmeier식에 포함된 변수들은 찾는 방법으로 계산된 굴절률을 이용하여 다시 투과율을 계산하고 그 결과가 측정된 투과율과 일치할 때 그 온도에서 재료의 변수로 정할 수 있었으며, 그 타당성은 상온에서의 공개 데이터와의 비교를 통해 검증되었다.
2) 본 재료의 transparent영역과 적외선 영역인 파동수 1000-4000cm^{-1}에서 실수부 굴절률 n은 1.5-1.7의 값을 가지며, 온도가 상승하면 각 파동수에서 실수부 굴절률은 매우 완만하게 증가하는데, 그 증가율 $\partial n/\partial T$는 모든 파동수에서 점차 감소하다가 450 K 이상에서는 일정한 값으로 된다.
3) 온도가 상승하면 모든 파동수에서 $k(n,T)$는 수배 증가하며, 적외선 파장이 길어질수록 k가 큰 값을 가진다. 파동수 $4000cm^{-1}$의 경우에는 무시할 수 있을 만큼 작다. $1500cm^{-1}$에서 온도가 상승함에 따라 $\partial k(\nu,T)/\partial T$도 증가한다. 파동수 2000 cm^{-1}이상의 영역에서는 $\partial k(\nu,T)/\partial T$ 값이 온도의 변화에 무관하다.

References

[1] A. S. Barker, “Infrared Lattice Vibrations and Dielectric Dispersion in Corundum,” Phys. Rev. 132:1474-1481, 1963.
DOI: https://doi.org/10.1103/PhysRev.132.1474

[2] F. Gervais, B. Piriou, “Anharmonicity in Several-polar-mode Crystals: Adjusting Phonon Self-energy of LO and TO Modes in Al2O3 and TiO2 to Fit Infrared Reflectivity,” J. Phys. C7:2374-2386, 1974.
DOI: https://doi.org/10.1088/0022-3719/7/13/017

[3] I. M. Malitson, M. J. Dodge, “Refractive Index and Birefringence of Synthetic Sapphire”, J. Opt. Soc. Am, 1405, 1972.

[4] M. E. Thomas, R. I. Joseph, W. J. Tropf, “Infrared Transmission Properties of Sapphire, Spinel, Yttria, and ALON as a Function of Frequency and Temperature”, Appl. Opt. vol. 27, pp. 239 - 245, 1988.
DOI: https://doi.org/10.1364/AO.27.000239

[5] C. H. Lange, D. D. Duncan, “Temperature Coefficient of Refractive Index for Candidate Optical Windows", SPIE Proc. 1326, pp. 71-78, 1990.
DOI: https://doi.org/10.1117/12.22483

[6] Optical and physical properties of materials book, pp. 14-18. Available from : http://www.slideshare.net/Palaniswamy Sankariah/optical physical properties of materials book, 2016. 11.

[7] Refractive Index of Sapphire (Al2O3). Available From: http://www.crystran.co.uk/ptical -materials/sapphire-al2o3 2016. 11.

정 경 석(Kyungseok Jeong) **[정회원]**

- 1983년 2월 : 서울대학교 항공공학과 (공학석사)
- 2002년 2월 : 서울대학교 항공공학과 (공학박사)
- 1992년 9월 ~ 현재 : 한국기술교육대학교 기계공학부 교수

<관심분야>
기계공학, 광학

진 두 한(Doohan Jin) **[정회원]**

- 2005년 9월 : 한국기술교육대하교 메카트로닉스공학부 (공학사)
- 2008년 2월 : 한국기술교육대하교 메카트로닉스공학 (공학석사)
- 2008년 3월 ~ 현재 : 한국기술교육대하교 박사과정

<관심분야>
기계공학, 기계설계, 광학