- a Surface-Mounted Cube in Uniform and Turbulent Streams, *J. Fluid Mech.*, **79**, Part 2 (1977), pp. 307-335.
- 4) 岡島 厚, 杉谷賢一郎: 平板上に置かれた有限長角柱周辺流れの可視化実験, 九州大学応用力学研究所報, 第46号 (1977), pp. 167-175.
 - 5) 坂本弘志, 谷口清一, 森谷 優, 有江幹男: 乱流境界層の中にある正方形柱周辺の流れに関する研究 (乱流境界層特性と抗力係数との関係), 日本機械学会論文集 (B編), **46** (1980), pp. 1437-1446.
 - 6) 高野 暉, 新井 勲, 松坂正芳: 角柱周りの流れ, 日本航空宇宙学会誌, **31** (1983), pp. 485-495.
 - 7) 坂本弘志, 森谷 優, 有江幹男: 乱流境界層の中にある角柱および円柱からの渦放出, 日本機械学会論文集 (B編), **49** (1983), pp. 44-52.
 - 8) 岡本哲史, 八木田幹, 片岡真一: 平板上に置かれた円すいまわりの流れ, 日本機械学会論文集, **42** (1976), pp. 2107-2115.
 - 9) 佐藤 浩: 風—この捉え難きもの, 数理科学, 第140号 (1975), pp. 28-34.
 - 10) 片山忠久: 障壁後流に関する風洞模型実験 (模型設置位置の境界層および模型のアスペクト比の影響について), 日本建築学会論文報告集, 第322号 (1982), pp. 76-81.
 - 11) 坂本弘志, 森谷 優, 谷口清一, 有江幹男: 乱流境界層内に埋没する有限幅平板周辺の流れ (第2報, ストローハル数およびフロパターンの), 日本機械学会論文集 (B編), **48** (1982), pp. 1683-1691.
 - 12) 大坂英雄, 山田英巳, 平野孝典, 嵐 義文, 大川徳義, 山田彦彦: 風洞実験によるグレートリーフ型人工魚礁の周りの流況解析, 水産土木, **15** (1978), pp. 19-26.
 - 13) 佐久田博司, 佐久田昌昭, 渡辺浩一郎, 大西 寛: 人工沈設魚礁模型の流体力学的特性に関する基礎的研究, 水産土木, **18** (1981), pp. 7-19.
 - 14) 影山芳郎, 大坂英雄, 山田英巳, 松井勝範, 笹山 仁: 人工魚礁モデル周りの流況 (形状及び開口比を変化させた場合), 水産土木, **19** (1983), pp. 1-8.
 - 15) 有江幹男, 木谷 勝, 小林正志: 多孔平板の後流およびその防風効果, 日本機械学会講演論文集, No. 780-15 (1978), pp. 70-72.
 - 16) Perera, M. D. A. E. S.: Shelter behind Two-Dimensional Solid and Porous Fences, *J. Wind Eng. Indus. Aero.*, **8** (1981), pp. 93-104.
 - 17) 橋本 享, 松見吉晴: 魚礁背後の流況特性について, 第28回海岸工学講演会論文集, 1981, pp. 387-391.
 - 18) 棚沢一郎, 西尾茂文, 高野 清, 田渡正史: タービュレンスプロモータによる長方形管内強制対流熱伝達の促進 (第1報, 多孔板プロモータ付き伝熱面の性能), 日本機械学会論文集 (B編), **49** (1983), pp. 676-684.
 - 19) 影山芳郎, 大坂英雄, 山田英巳: 平面上に置かれた透過壁立方体周りの流れの可視化, 水産土木, **18** (1982), pp. 1-9.
 - 20) 影山芳郎, 大坂英雄, 山田英巳: 水槽実験による多孔立方体魚礁モデル周りの可視化, 水産土木, **17** (1980), pp. 1-10.
 - 21) Castro, I. P.: Wake Characteristics of Two-Dimensional Perforated Plates Normal to an Air-Stream, *J. Fluid Mech.*, **46**, Part 3 (1971), pp. 599-609.
 - 22) 本地弘之: 流れに直角に置かれた有限円柱列の低レイノルズ数領域における伴流特性, 九州大学応用力学研究所報, 第39号 (1973), pp. 1-36.
 - 23) Baker, C. J.: The Turbulent Horseshoe Vortex, *J. Wind Eng. Indus. Aero.*, **6** (1980), pp. 9-23.
 - 24) 大坂英雄, 山田英巳, 影山芳郎: 透過壁立方体周りの層流馬蹄形渦の可視化, 流れの可視化, **2** (1982), pp. 44-50.
 - 25) Schlichting, H.: Boundary-Layer Theory, Seventh, ed., McGraw-Hill, New York, 1979, pp. 655-657.

— 論 文 —

高性能パルス分子線装置の開発と分子線の特性*1

Development of a High-Performance Pulsed Molecular Beam Apparatus and Characteristics of the Beam

手 島 光 司*2・守 谷 富 男*2
Koji TESHIMA, Tomio MORIYA
高 橋 教 雄*2
and Norio TAKAHASHI

Key words: rarefied gas flows; molecular beams

Abstract

A pulsed molecular beam source with an electromagnetic valve controlled by a micro-computer has been developed. Relative intensities

and velocity distributions of the molecular beams from the source with a convergent and a convergent-divergent nozzles are measured. For these measurements a data acquisition system using the micro-computer has been also developed. For the convergent nozzle the measured beam intensity and speed ratio are consistent with theoretical considerations and the existing

*1 昭和57年10月18日, 第14回流体力学講演会にて発表. 昭和58年12月14日原稿受理.

*2 京都大学工学部航空工学教室

data. For the nozzle with a divergent section, beams of about 20 times larger in intensity and two times in speed ratio compared with those for the convergent one are obtained.

1. 緒 言

最近、物理化学の分野で、超音速ノズル分子線とレーザーを利用した新しい試みがなされつつある¹⁾。すなわち、従来多くの素過程の積み重ねの結果としてしか観測しえなかった物理化学的現象を、一つ一つの素過程を個々に観測することにより、全体の現象の理解を得ようとするものである。超音速飛行に伴う高温気体の化学、表面における反応性、高速分子の表面での挙動等、航空宇宙の分野における多くの問題もこのような素過程の一つ一つの解明によって、より深く理解されることが期待できる。このような実験では、あらかじめ状態のわかった分子同士の1回の衝突のみによって生じる状態を知る必要がある。それゆえ、流速は大きい、しかしなお分子間の平均自由行程が複数回の衝突を行わないくらいに十分長く、かつ分子のエネルギーが十分そろっているという特性をもつ超音速ノズル分子線は、この種の実験にとって不可欠の手段となっている。

しかしながら、各種高真空排気装置が手軽に利用できるようになり、また測定技術および装置の向上が目覚ましいとはいえ、実際にこれらの分子同士あるいは分子と表面の干渉の結果散乱される粒子を、バック・グラウンドによるものと識別して検出することは必ずしも容易ではない。散乱分子の数、すなわち入射分子線強度を増し、測定室の真空度を十分よくしなければならぬ。分子線強度はノズルを通る流量に比例するから、ノズル径を大きくすることにより増やすことができるが、そのためには膨張室の排気容量を大きくしなければ、測定室の真空度の低下をきたすだけでなく、分子線の生成にも影響がある。また、分子線のエネルギーの単色性を表わす速度比を大きくするには、流量一定の下ではむしろノズル径を小さくして岐点圧力を大きくするほうが有利である。

最近、ごく容易に利用しうる規模の排気装置を用いて、分子線強度と速度比の両者を大きくとり、測定室の真空度を高く保つ手段として、パルス作動型の分子線源が使われるようになってきた。それはパルスの幅およびその間隔を変えることにより、任意の径のノズルを使って、広い岐点圧力範囲にわたって分子線を生じさせることができる。弁を開閉する機構としては、おもに静電反撥力を利用するもの²⁾と、電磁力によるもの³⁻⁶⁾がある。前者は弁の質量を非常に小さくでき、したがって弁の開閉に要する時間も短く、100 μsec 以

下の短いパルスを得ることができる。後者はソレノイドを使ってプランジャーの先の弁を開閉するもので、自動車の燃料噴射弁を改造したものがよく使われている^{4,5)}。

本論文では、すでにその基本的特性を調べた⁶⁾ 後者に属するパルス分子線源をさらに小型化し、マイクロ・コンピュータを用いて制御し、その特性を強度・波形・速度比について詳細に調べた結果について報告する。また、通常用いられているソニック・ノズル(またはオリフィス)の代りに超音速円錐ノズルを用いた場合の分子線の特性についても述べる。

2. 実験装置および実験方法

2.1 分子線源 パルス分子線源は第1図に示すような約8 cm³ の内容積をもつステンレス製の貯気室、ノズル、プランジャー・ロッドおよびソレノイドにより構成されている。プランジャー・ロッドの先端のテフロン製のプラグがバネの力によりノズル内壁に圧着され貯気室を密閉する。他端はソレノイドのシャフトに連結されており、ソレノイドに通電するとプラグがノズルから引き離され、気体がノズルを通して膨張室に噴出する。このときの時間応答性をよくするために、ロッドとシャフトの連結部には遊びをもたせている。このソレノイドへの通電時間とタイミングはマイクロ・コンピュータ(日立、MB 6809型)によって制御されており、任意の幅および頻度のパルス・ジェットを生じさせることができる。ノズルとして、半頂

第1図 パルス分子線源

第2図 ノズル

第3図 分子線装置と飛行時間測定の大略

角 30° の円錐状の収縮部をもちノズル出口において自由噴流を形成するもの (オリフィス*) および半頂角 5° の円錐状の拡散部をもつ円錐ノズルを用いた (第2図参照)。

2.2 分子線装置 前節で述べたパルス分子線源からの超音速ジェットは、第3図に示すような四段の差動排気系よりなる分子線装置により分子線を形成する。膨張室は実効排気速度 50l/sec のメカニカルプスター・ポンプにより、 0.4Pa 、コリメーター室、主真空室および検出器室は4インチ径の油拡散ポンプにより、それぞれ 1×10^{-4} 、 7×10^{-5} および $2 \times 10^{-5}\text{Pa}$ まで排気することができる。膨張室とコリメーター室の間にはスライド式シャッターが設けられており、膨張室を大気開放してもその他の室を高真空に保つことができる。スキマーとしては、膨張流との干渉を最も少ないように設計された⁷⁾市販のもの (Beam Dynamics 社モデル I 型) を用いた。分子線の検出は、分子線の飛行方向に直角においた四重極 (Q-pole) 質量分析器 (島津, MASPEQ 70) および二次電子増幅管 (S.E.M.) により行った。電子衝撃型イオン源により電離された分子は、レンズ系により加速・収束された後、四重極質量分析器で質量の弁別をされ、そのイオン電流が二次電子増幅管で増幅される。この電流はさらに電圧に変換されて増幅された後、高速アナログ・デジタル (A-D) 変換器 (NF 回路設計, WM-852 型) により記録される。

* このような形状のノズルからの自由噴流と、ノズル出口径に比べて小さい厚さのオリフィスからの自由噴流は、その出口付近を除いて同じものと見なせる¹⁰⁾ ので、以後拡散部をもつノズルと区別するため便宜上オリフィスと呼ぶ。

2.3 飛行時間 (TOF) 法 分子線の重要なパラメータである速度比を調べるために、強度測定とともに飛行時間測定を行った。この場合には、主真空室内に幅 0.9mm のコリメーティング・スリットをそのすぐ下流に、円周付近に幅 0.8° 、半径方向の長さ 10mm の2本のスリットをもつ直径 100mm 、厚さ 0.1mm のステンレス円盤をおいた。この円盤は $4,500\text{rpm}$ で回転させられ、このときのスリットの半値幅は $30\mu\text{sec}$ となる。一方のスリットが分子線を切ったときに反対側のスリットにおけるフォトセルの信号が、一定距離 (111.8cm) 離れた検出器における飛行時間波形の開始時間を与える。

いま、時間 $t=0$ でスリットを通った分子線が流れ方向に温度 $T_{\parallel}$ の Maxwell 速度分布をもつものとする、距離 L において観測される検出器の信号 S の時間変化は

$$S(t) = C \frac{1}{t^4} \exp \left[-\frac{mL^2}{2kT_{\parallel}} \left(\frac{1}{t} - \frac{1}{t_M} \right) \right] \quad (2.1)$$

で与えられる⁸⁾。ここで C は比例定数、 t は飛行時間、 m は気体分子質量、 k はボルツマン定数、 t_M は質量平均飛行時間である。 u を平均流速とすると $t_M = L/u$ で表わされる。実際には有限幅のチョッパーおよびコリメーティング・スリットを用いるため、検出器に到達する分子の飛行開始時間にはこれらの幅と円盤の回転数で決まる拡がりがある。したがって実際に観測される TOF 波形 $S(t)$ は、分子線がスリットを通過する時間をゲート関数 $G(t)$ で表わすと、

$$S(t) = \int_{-\infty}^{\infty} G(\tau) s(t-\tau) d\tau \quad (2.2)$$

のように書ける。本実験では $G(t)$ として、上底 $30\mu\text{sec}$ 下底 $60\mu\text{sec}$ の台形関数を用いた。(2.2) 式より

第4図 飛行時間測定におけるパルス分子線源の制御とデータ集積システム

温度 T_{II} をパラメータとする TOF 波形を数値計算し、観測した波形と比較してよく一致するような T_{II} を最少自乗法を用いて決定する。

分子線の速度比 S_{II} は、流れの速度と流れ方向の熱速度の比として次式で表わされる。

$$S_{II} = \sqrt{\frac{mu^2}{2kT_{II}}} \quad (2.3)$$

平行方向のマッハ数 M_{II} とは $S_{II} = (\gamma/2)^{1/2} M_{II}$ の関係がある。速度の半値幅 Δu は速度比を用いると単原子気体 ($\gamma=5/3$) の場合には $\Delta u/u \approx 1.65/S_{II}$ となる。

2.4 パルス分子線源の制御とデータ集積システム

パルス分子線源の制御は、マイクロ・コンピュータからソレノイドへの電流の ON/OFF 命令によって行われるが、同時にこのマイクロ・コンピュータからの信号によって、分子線の検出波形の高速 A-D 変換器への記録およびコンピュータへのデータの読み込みと蓄積が行われる。飛行時間測定の際には、回転円盤上のスリットがパルス分子線を任意の時間において切るように同期をとる必要がある。第4図に飛行時間測定における分子線源の制御とデータ集積システムのブロック図を示す。コンピュータはフォトセルの信号を受け、あらかじめ設定された遅延時間ののち、決められた持続時間だけソレノイドに通電信号を与えると同時に、A-D 変換器を待機状態にする。A-D 変換器は次のフォトセル信号でトリガーされ、このときスリットを通った分子線の飛行時間波形の記録を始める。ただし、分子線が検出器に到達するまでの時間だけ記録開始時間を遅延しておく。コンピュータは、この $1 \sim 2 \mu\text{sec}/\text{word} \times 1024 \text{ words}$ の A-D 変換されたデータをバッファメモリ上に読み込み、あらかじめ設定さ

れた時間間隔の後、再びフォトセル信号に対する待機状態に戻る。十分な信号量が蓄積されるまでこれが繰り返される。この蓄積回数は実験条件により異なるが、1 word 当り 3 byte 計 3,072 byte の記録番地を確保し、128~2,048 回のデータの蓄積を行ったのち、1 byte/word になるよう平均化処理を行った。飛行時間波形データはさらにホスト・コンピュータ (ソード M 223, Mark IV) に送られ、ここで数値計算による波形との比較がなされ、平均飛行速度 u および平行温度 T_{II} が決められる。

3. パルス分子線の特性

3.1 分子線強度 アルゴンを試料気体として、パルス分子線の強度の岐点圧力およびオリフィス (またはノズル出口) とスキマー間距離に対する依存性を調べた。ソレノイドへの通電時間 5 msec, 周期 0.78 sec で 128 回の積算平均化処理を行った。得られた分子線強度の時間変化を、岐点圧力 p_0 をパラメータとして、オリフィスおよびノズル出口とスキマー間距離に対して並べたものを第5および第6図に示す。各信号中、下は単純平均して得られた相対強度を表わしており、上は強度の小さい波形に対しその時間変化を見やすくするために適当な大きさに引き延ばされている。ソレノイドへの通電時間の 5 msec に対して、パルスの持続時間は、岐点圧力によって異なるが、2~3 msec であり、立ち上り、立ち下りに 0.6~1.0 msec を要している。これは分子線が検出器に到達するまでの間に速度分布による拡がりが見られること、および1回ごとのパルスの立ち上り時間とその持続時間に 0.5 msec 程度のばらつきがあることに起因する。後者はパルス分子線源のロッドとオリフィスとの摩擦、プラグ

第5図 分子線強度のパルス波形 (オリフィス)

第6図 分子線強度のパルス波形 (ノズル)

を圧着するバネの動き、ロッドの運動に伴う横振れ等の機構上の問題と考えられる。したがって、積算平均化処理された強度の時間履歴は必ずしも1回ごとのそれを忠実に再現してはいない。ただし、時間的にあまり変動のないパルス波形は1回のものとほぼ同じとみなせる。また、オリフィスの場合の各岐点圧力に対して x/d の小さいところで得られる波形、およびノズルの場合の岐点圧力が 26.6, 53.2 および 101 kPa で得られた波形においてみられる、パルスの初めと終りのピークは上に述べたばらつきから生じたものではなく、1回ごとのパルスにおいてもみられるものである。上述の機構上の問題から、本装置ではパルス幅が 1 msec 以下となるような短い通電時間では再現性のよいパルス波形は得られなかった。また本実験を通じて最大の繰返し頻度は 5 Hz であった。

オリフィスの場合には立ち上がり後 1 msec でほぼ定常になっているので、このときの値を相対分子線強度

第7図 分子線強度のスキマー位置に対する変化 (オリフィス)

とし、その無次元化オリフィススキマー間距離 x/d に対する変化を p_0 をパラメータとして第7図に示す。一定の p_0 に対して、分子線強度は x/d とともに増加し、ある x/d において最大となった後緩やかに減少している。このような分子線強度の x/d への依存は、膨張流とスキマーおよび膨張室残留気体との干渉によるものと理解されている⁹⁾。すなわち、 x/d の小さいところでは膨張流の密度が大きく、スキマーを通る膨張流がスキマー壁から反射する分子と干渉し減衰を受ける。 x/d が大きくなるに従い密度が減少し、このスキマー干渉が少なくなり、スキマーを通過する流束は増加する。しかし、膨張流の密度の減少に伴い、膨張室内の残留気体による流れの減衰効果が増し、分子線強度は減少し始める。強度の最大値は 80 kPa までは p_0 とともに増加しているが、それ以上ではこの残留気体により減衰が大きくなるため、減少している。したがって、得られうる最大の分子線強度は、パルス分子線の場合においても、膨張室の大きさと排気装置の性能に依存している。しかしながら、円錐ノズルの場合には以下に示すようにこのことはあてはまらない。

円錐ノズルの場合には、パルス波形は 1 msec 付近でも必ずしも定常にはならないが、オリフィスとの比較の便宜上、同じ時間における値を相対強度とし、そのノズル出口とスキマー間距離に対する変化を第8図に示す。 p_0 が 13.3 および 26.6 kPa の場合には、強度はオリフィスの場合と同様の x/d^* に対する変化を示す。 p_0 が 53.2 および 79.8 kPa の場合には、強度は $x/d^* = 10$ 以下では大きいのが 10~40 の間で非常に小さくなった後、40 以上で再び大きくなっている。これは、 x/d^* の小さいところでは密度が十分高く、スキマー入口に衝撃波が付着するような状態になっているため、膨張流はスキマーによってあまり減衰を受けず、また x/d^* の大きいところでは自由分子流にな

第8図 分子線強度のスキマー位置に対する変化 (ノズル)

るためスキマーの干渉は弱く強度は大きくなるが、中間の x/d^* においては先に述べたスキマー干渉が大きく強度が極端に下ってしまうことによる。したがって、さらに大きい x/d^* まで強度を測定することができれば、低圧の場合と同様に強度の最大値が得られるはずである。これに対し p_0 が 101 kPa 以上では、強度は p_0 とともに増加し、 x/d^* に対してあまり大きく変動しない。この傾向はオリフィスの場合と顕著に異なっている。最大の分子線強度となる岐点圧力の上限は現在の実験条件下ではみられない。 $p_0=505$ kPa において得られた最大の分子線強度は、0.3 mmφ のオリフィスにおいて得られるその約 20 倍となっており、先の報告⁶⁾ における値から推定すると約 10^{21} 個/ster・sec に達していると思われる。

3.2 速度分布と速度比 第9図に得られた飛行時間波形の代表例と、Maxwell 分布を仮定した計算による値との比較を示す。(a)に示すように、高い岐点圧力のノズルの場合(b)や、スキマー干渉が非常に強くて二つの速度分布があらわれる場合(c)を除いて、観測された TOF 波形は、ほぼ単一の Maxwell 分布を用いて表わすことができる。

オリフィスの場合には、強度が最大となる x/d においては、強度は時間的にほぼ一定である。このときの分子線の速度比の時間的変化を第10図に示す。時間0はパルスの立ち上がった時間にとっている。パルスの立ち上がりでは速度比は小さく、立ち下りでも高い岐点圧力を除いてやはり速度比は小さくなるが、パルスの持続時間の 0~2 msec ではほぼ一定値となっている。したがって、強度が最大となるような条件では速度比もまた均一なパルス分子線が得られているといえる。強度の場合と同様に立ち上がりから 1 msec にお

第9図 飛行時間測定波形

- (a) ▲: $T_H=1.05^\circ\text{K}$ に対する Maxwell 分布
(b) ▲: $T_H=0.32^\circ\text{K}$ に対する Maxwell 分布

ける速度比のオリフィススキマー間距離に対する変化を第11図に示す。各岐点圧力に対して最大の強度の得られた位置を矢印で示している。速度比はこの値までは増加するが、それ以上の x/d ではほぼ一定あるいは、岐点圧力の大きい場合にわずかに減少している。岐点圧力の増加とともに 79.8 kPa までは、この一定となる速度比は増加しているが、それ以上では減少している。これは最大強度が 106 kPa から減少し始めるのに対応している (第7図参照)。

ノズルの場合の速度比の同様の結果を第12および13図に示す。時間的にほぼ一定のパルスの得られた、13.3, 26.6 および 202 kPa 以上の岐点圧力においては、オリフィスの場合と同様、速度比はパルス持続時間内で一定となっている。また、強度がそうであった

第10図 速度比の時間的変化 (オリフィス)

第12図 速度比の時間的変化 (ノズル)

第11図 速度比のスキマー位置に対する変化 (オリフィス)

第13図 速度比のスキマー位置に対する変化 (ノズル)

ように、速度比も岐点圧力とともに増加しており、オリフィスの場合のように減少することはない。しかし、 x/d^* に対しては、13.3, 26.6 kPa においてはオリフィスの場合と同様の変化をするが、202 kPa 以上においては x/d^* の小さいところでその最大値をもち、それより大きい x/d^* では急速に減少し、その後緩やかに変化している。得られた速度比の最大値は $p_0=505$ kPa において 45 であったが、第9図にその TOF 波形を示したように、その半値幅は非常に狭くなっているが、単一の Maxwell 分布からずれている。

分子線の平均飛行速度はオリフィスの場合には、等エントロピー膨張の場合に得られる最大速度 $u_{\max} = \sqrt{3} a_0$ とは $\pm 1\%$ 以内で一致しているが、ノズルの

場合には第14図に示すように、岐点圧力にノズル出口スキマー間距離によって $u_{\max}$ とはかなり違った値になっている。

4. 考 察

4.1 オリフィス オリフィスからの自由噴流の中心軸上での物理量は、よい近似で一点湧き出し流れで表わしうることがよく知られている¹⁰⁾。このときオリフィスから十分離れたところ ($x/d > 4$) では、Mach 数 M は次のように書ける。

第14図 平均飛行速度のスキマー位置に対する変化 (ノズル)

$$M = A \left(\frac{x}{d} \right)^{\gamma-1} \quad (4.1)$$

ここで A は比熱比 γ によって決まる定数である。分子線の強度はこの湧き出し流れの単位立体角当りの流量と考えることができ、次のように表わされる。

$$I_0 = 4\pi r^* u^* n^* / 4\pi \text{ particles/str}\cdot\text{sec} \quad (4.2)$$

ここで、 r^* , u^* , n^* は湧き出し流れが音速となる半径、速度、密度である。等エントロピー膨張を仮定すると、湧き出し流れの関係式と (4.1) 式から、 r^* と d の関係を求めることができ、(4.2) 式は次のようにかける。

$$I_0 = \left(\frac{2}{\gamma-1} \right)^{(\gamma+1)/2(\gamma-1)} A^{-2/(\gamma-1)} n_0 a_0 d^2 \quad (4.3)$$

ここで n_0 , a_0 は岐点における数密度および音速である。この理論的に得られた強度は、スキマー径がノズル径に比べて十分大きい場合に得られうるものである。すなわち、流れに垂直方向の速度拡がりの方がスキマー径に比べて十分狭く、すべての分子がスキマーを通過する、いわゆるスキマー遮蔽効果のない場合に得られる強度である。LeRoy と Govers¹¹⁾ は有限の大きさのスキマーの存在を考えた分子線強度 I に対する式を導き、それにより得られる値は Hagena と Morton¹²⁾ によるより簡単な式

$$I = n_s u_s x_s^2 (1 - \cos^3 \alpha_s e^{-S_{\perp s}^2 \sin^2 \alpha_s}) \quad (4.4)$$

によるものとよく一致することを示した。(4.4) 式において添字 s はスキマーにおける値を表わし、 $S_{\perp}$ は、垂直方向の速度比、 α_s は中心軸とスキマー入口のなす角である。等エントロピー関係と (4.1) 式より得ら

れる関係 $n_s = n_0 \{(\gamma-1)A^2/2\}^{-1/(\gamma-1)} (x_s/d)^{-2}$ および、 $u_s \equiv u_{\max} = \{2/(\gamma-1)\}^{1/2} a_0$ を使うと (4.4) 式は次のようにかける。

$$\begin{aligned} I &= \left(\frac{2}{\gamma-1} \right)^{(\gamma+1)/2(\gamma-1)} A^{-2/(\gamma-1)} n_0 a_0 d^2 \\ &\quad \times (1 - \cos^3 \alpha_s e^{-S_{\perp s}^2 \sin^2 \alpha_s}) \\ &= I_0 k_s \end{aligned} \quad (4.5)$$

k_s がスキマー遮蔽効果を表わしている。十分大きい x_s に対しては $S_{\perp}$ は大きいから、スキマー径が大きい場合には、 $k_s = 1$ となり、理想的な分子線強度が得られる。スキマー径が十分小さく $S_{\perp}^2 \sin^2 \alpha_s \ll 1$ となるような場合には、(4.4) 式は次のようにかくことができる。

$$I = n_s u_s A_s S_{\perp s}^2 / \pi \quad (4.6)$$

ここに A_s はスキマー入口面積である。この式は Parker ら¹³⁾ による式と一致している。したがってこの式が適用されるような場合には、スキマーの大きさとスキマーにおける垂直方向の速度比が関係してくる。

一般に分子線を生成するような高い圧力比の膨張流においては、併進非平衡が生じる。Anderson と Fenn⁹⁾ は、平行方向の速度比は sudden freezing モデルを考えると実験値とよく一致することを示している。垂直方向の速度分布の測定はあまりなされていないので、彼らの sudden freezing モデルを適用すると速度比は次式のようなになる。

$$S_{\perp s} = (x_s/x_f) S_{\perp f} \quad (4.7)$$

ここで、 f は凍結点における値を表わしている。 x_f として Anderson と Fenn⁹⁾ による半経験式を使い、岐点圧力 (Torr) とオリフィス径 (cm) で表わすと、室温 (298°K) のアルゴンに対する分子線強度は次のようにかける。

$$I = 4.21 \times 10^{20} A_s p_0^{0.6} d^{-0.4} \text{ particles/str}\cdot\text{sec} \quad (4.8)$$

すなわち、スキマー径とノズル径の比が小さい場合には、スキマー遮蔽効果が顕著になり、それに伴い併進非平衡の効果もあらわれる。その結果、分子線強度は岐点圧力に比例しなくなり、またオリフィス径が大きくなると逆に減少する。パルス分子線の場合には、かなり大きいオリフィスを用いるので、得られる分子線強度の岐点圧力依存性は (4.8) 式のようなことをすでに示した⁹⁾。本実験の結果も、第15図に示すように、残留気体による減衰が顕著にならない 106 kPa までの岐点圧力に対して、この関係に近くなっている。

スキマー干渉に関する、Bird¹⁴⁾ のモンテカルロ・シミュレーションによると、スキマーにおけるクヌード

第15図 分子線強度の岐点圧力依存

第17図 終端マッハ数の $p_0 d$ に対する依存

セン数 Kn_s がほぼ4位で、スキマー干渉がほぼ無視しう程度になっている。この Kn_s を、スキマー入口における平均自由行程 λ_s と、スキマー口径 $2r_s$ との比として定義すると、自由噴流の関係式から、アルゴンに対しては次のようにかける。

$$Kn_s \equiv \frac{\lambda_s}{2r_s} = 0.172 \frac{(x_s/d)^2}{p_0 r_s} \quad (4.9)$$

ここで、長さは mm、圧力は Torr を単位としている。したがって、 x_s と $p_0 d^2$ の間には Kn_s をパラメータとする次の関係が成り立つ。

$$x_s = \left(\frac{Kn_s \cdot r_s}{0.172} p_0 d^2 \right)^{1/2} \quad (4.10)$$

強度の最大値の得られた x_s の値を $p_0 d^2$ に対してプロットし、 Kn_s をパラメータとする (4.10) 式の関係と比較すると第16図に示すように、 $Kn_s = 3 \sim 4$ となり、Bird の予測とよく一致している。

飛行時間測定の結果の詳細は別に報告するが、ここで得られた速度比の最大値を Anderson と Fenn⁸⁾ による終端マッハ数

$$M_T = 9.60(p_0 d)^{0.4} \quad (P_0 d: \text{Torr} \cdot \text{cm}) \quad (4.11)$$

と比較すると、第17図に示すようになり、残留気体による分子線の減衰の顕著な、大きい岐点圧力の場合を除いてよく一致している。

4.2 円錐ノズル ノズルの場合に得られた分子線

第16図 分子線強度の最大となるスキマー位置と $p_0 d^2$ の関係

第18図 ノズルからの噴流のレーザー誘起蛍光法による可視化写真

強度、速度比および平均飛行速度は、オリフィスの場合とは非常に異なっている。低い岐点圧力 (13.3 ~ 26.6 kPa) ではオリフィスの場合とよく似ているが、50 ~ 100 kPa では強度は非常に小さくなり、速度分布は第9図に示したように単一の Maxwell 分布で表わすことができなくなる。一方、200 kPa 以上の岐点圧力に対してはオリフィスの場合と異なり、強度および速度比は圧力とともに増加する。このように拡散部をもつノズルによる分子線の特性は、ノズル内およびその後の膨張過程に関係していると思われる。

第18図にノズル出口下流の流れをレーザー誘起蛍光を利用した可視化¹⁵⁾によって示す。ノズル出口の圧力は実際の分子線生成時とは異なるが、岐点圧力による流れの変化の様子を知ることができる。13.3 および 26.6 kPa では、ノズル全体が境界層でおおわれたようにみえる。第14図に示した分子線の平均飛行速度が、等エントロピー極限 $u_{\max}$ よりもかなり大きいのは、この境界層を通してのノズル壁から主流への熱伝導により、主流の有効岐点温度が増加していることによると考えられる。53.2 kPa 以上では、ノズル出口における等エントロピー・コアと考えられる部分の

第19図 強いスキマー干涉のある場合の飛行時間波形の
パルス持続時間内での変化
数字は順番を表わし、それらの間隔はおおよそ
0.267 msec

直径が増加しており、流れ全体が大きくなっている。

53~101 kPa においてみられる第9図に示したような二つの速度成分のうち一つは $u_{\max}$ より大きく、他の1は小さい平均飛行速度を与える。この理由として次のように推論できる；スキマーにおける平均飛行速度は等エントロピー・コアの増大に伴って $u_{\max}$ に近づくが、なおそれより大きい。この流れがスキマー入口で非常に強い干涉を受けるが、入口周辺部で強い干涉を受けた分子（遅い成分）と中心部のほとんど干涉を受けない分子（速い成分）が、スキマー通過後十分衝突緩和せず分子線を形成していると見なせる。実際、これらの遅い成分のあらわれる場合は、分子線強度も非常に小さい場合に対応している（第6図、第8図参照）。

スキマー干涉が強く、強度がパルス持続時間内で変化する場合について、速度分布の時間的変化の測定例を第19図に示す。図中上は 53.2 kPa に対するパルス波形であり、下は TOF 波形の時間的変化を示す。パルス中央付近のスキマー干涉の最も強い部分で遅い速度成分の強度が大きくなっている。このような二つの速度分布はオリフィスの場合にも非常に強いスキマー干涉を受けていると考えられる場合に観測された。

200 kPa 以上の高い岐点圧力では、強度は x/d^* の小さい値でわずかに極大値をもち、 x/d^* の増加とともにやや減少した後再び増加する。一方、平均飛行速度および速度比は、強度の極大値を与える x/d^* よりも小さいところで最大となり、 x/d^* とともに減少した後一定値あるいはやや増加する傾向をもつ。速度および速度比の減少をスキマー干涉によるものとする分子線強度の x/d^* に対する増加が説明できない。

一つの有力な可能性として、検出室の容量が小さいために分子線強度が大きくなると背圧の上昇により見掛けの速度分布が遅いほうに広がることが考えられる。これは第9図に示したノズルの場合の最大の速度比を得た速度分布にもみられる。Maxwell 分布からずれた低速側の信号は、検出室のイオン化領域に存在する二次的な分布によるものであろう。このように考えると実際の速度比は第13図のように x/d^* に対して急激に変化していないのであろうと思われる。しかしながらノズルの場合の分子線の特性については、ノズル内流れ、出口からの噴流の構造、スキマー干涉の詳細を検討しなければ明確な結論を与えることはできない。

ここで行ったような実験条件下では、クラスターの生成が考えられる¹⁶⁾。事実、アルゴンの2量体および3量体のイオン Ar_2^+ , Ar_3^+ の強度は、 Ar^+ に対してそれぞれ最大3% および0.2% までが観測された。しかしながら、本実験では、オリフィスの場合にみられた¹⁷⁾ クラスタ生成の分子線特性への顕著な影響は観測されなかった。

5. 結 論

ソレノイド駆動によるパルス分子線源をマイクロ・コンピュータにより制御し、強い強度と大きい速度比をもつ分子線を得ることができた。オリフィスの場合に得られる強度はスキマーの遮蔽効果と併進非平衡から予測される岐点圧力依存を示すが、膨張室の有限容積のために最大の強度の得られる岐点圧力に上限があり、得られる速度比にも上限がある。これに対し、円錐ノズルの場合には、強度・速度比とも岐点圧力とともに増加している。オリフィスの場合と比べると、強度で約20倍、速度比で約2倍の分子線を得た。しかしながら、ノズルの場合の分子線の特性についての明確な理解を得るには、流れの性質をいっそう詳細に調べる必要がある。

おわりに、本研究は文部省科学研究費特定研究「原子過程科学の基礎」によって行われたことを記し、関係の方々に感謝の意を表わす。

参 考 文 献

- 1) Levin, R.D. and Bernstein, R.B.: Molecular Reaction Dynamics, Oxford Univ. Press, Oxford, 1974.
- 2) Gentry, W.R. and Giese, C.F.: Ten-microsecond Pulsed Molecular Beam Source and a Fast Ionization Detector, Rev. Sci. Instrum., **49** (1978), pp. 595-600.
- 3) Bier, K. and Hagen, O.: Optimum Conditions

- for Generating Supersonic Molecular Beams, *Rarefied Gas Dynamics*, Vol. 2, ed. by deLeeuw, J. H., Academic Press, New York, 1966, pp. 260-278.
- 4) Behlem, F. M., Mikami, N. and Rice, S. A.: Dynamics of Radiationless Processes Studied in Pulsed Supersonic Free Jets, *Chem. Phys. Lett.*, **60** (1979), pp. 364-367.
 - 5) Izawa, M., Kita, S. and Inouye, H.: Some Characteristics of Pulsed Nozzle Beams, *J. Appl. Phys.*, **53** (1982), pp. 4688-4694.
 - 6) Teshima, K. and Yasunaga, Y.: Characteristics of Pulsed Molecular Beams from an Electromagnetic Valve, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **22** (1983), pp. 1-5.
 - 7) Gentry, W. R. and Giese, C. F.: High-precision Skimmers for Supersonic Molecular Beams, *Rev. Sci. Instrum.*, **46** (1975), p. 104.
 - 8) Anderson, J. B. and Fenn, J. B.: Velocity Distributions in Molecular Beams from Nozzle Sources, *Phys. Fluids*, **8** (1965), pp. 780-787.
 - 9) Anderson, J. B.: *Molecular Beams from Nozzle Sources, Molecular Beams and Low Density Gasdynamics*, ed. by Wegener, P. P., Dekker Press, New York, 1974, pp. 1-91.
 - 10) Ashkenas, H. and Sherman, F. S.: The Structure and Utilization of Supersonic Free Jets in Low Density Wind Tunnels, *Rarefied Gas Dynamics*, Vol. 2, ed. by deLeeuw, J. H., Academic Press, New York, 1966, pp. 84-105.
 - 11) LeRoy, R. L. and Govers, T. R.: "Ideal" Intensities of Supersonic Molecular Beams, *Can. J. Chem.*, **48** (1970), pp. 1743-1747.
 - 12) Hagena, O. F. and Morton, H. S. Jr.: Analysis of Intensity and Speed Distribution of a Molecular Beam from a Nozzle Source, *Rarefied Gas Dynamics*, ed. by Brundin, C. L., Academic Press, New York, 1967, pp. 1369-1384.
 - 13) Parker, H. M., Kuhlthau, A. R. and Zapata, R.: The Application of Supersonic Beam Sources to Low-Density, High-Velocity Experimentation, *Rarefied Gas Dynamics*, ed. by Deviene, F. M., Pergamon Press, London, 1960, pp. 69-79.
 - 14) Bird, G. A.: Transition Regime Behavior of Supersonic Beam Skimmers, *Phys. Fluids*, **19** (1976), pp. 1486-1491.
 - 15) 手島光司, 守谷富男, 森 敏一: レーザー誘起蛍光法による自由噴流の可視化, *日本航空宇宙学会誌*, **32** (1984), pp. 309-312.
 - 16) Hagena, O. F.: Cluster Beams from Nozzle Sources, *Molecular Beams and Low Density Gasdynamics*, ed. by Wegener, P. P., Dekker Press, New York, 1974, pp. 93-181.
 - 17) 手島光司: パルス作動分子線装置によるダイマーの生成, 第12回流体力学講演会予稿集, 1980, pp. 164-167.