微弱な電子線を用いて回転スペクトルを測定する手法の開発*

徳 増 崇^{*1}, 松 本 洋 一 郎^{*2}An Improved Method for the Estimation of Rotational Temperature
with a Weak Electron BeamTakashi TOKUMASU^{*3} and Yoichiro MATSUMOTO^{*3} Institute of Fluid Science, Tohoku University,
2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai-shi, Miyagi, 980-8577 Japan

In this paper, an improved method for the estimation of rotational temperature with a weak electron beam is presented. Using the method, the effect of an electron beam on a flow field becomes smaller and it is possible to obtain the distribution of rotational temperature with a smaller experimental apparatus. In the method, slit width of a monochromator is set wider to obtain larger signals for the higher rotational levels. Due to the decrease of resolution, the rotational spectra are measured with much overlapping, but they are divided into their individual rotational spectra by using a fitting function. Using the improved method, a rotational temperature and a relative number density distribution in a supersonic nitrogen free jet expanding from a stagnation temperature of 350 K is measured. Moreover, the experimental results are compared with theoretical results based on master equations and those simulated by the Direct Simulation Monte Carlo (DSMC) method using the Dynamic Molecular Collision (DMC) model. These results are consistent with each other, enabling verification of the experimental results.

Key Words: Rarefied Gas, Molecular Flow, Jet, Non-Equilibrium Flow, Rotational Temperature, Electron Beam, Fluorescence

1. 緒 言

薄膜形成やCVDスパッタリング技術の発達に伴い、超音速自由噴流場の構造の理解が工学的にも非常に重要になってきている。特に二原子分子の自由噴流場では非平衡状態が形成され、各自由度(並進, 回転, 振動)の温度が大きく異なるため、この構造を把握することが生成物の機能の向上や効率の改善に不可欠である。

自由噴流場の回転温度の測定には Electron Beam Fluorescence (EBF) 法^{(1)~(4)} がよく用いられる。これは電子銃を用いて分子をイオンの励起状態に遷移させ、このイオン化した分子が基底状態に遷移する際に発する蛍光を測定して測定点での分子のエネルギー分布を知る方法である。この際分子のイオン化時に生じる遷移に対して適切な遷移モデルを仮定する必要がある。

この手法の欠点は N_2^+ イオンの遷移スペクトルの幅

が狭く、分光器の分解能を限界まで上げて測定しなければならないことである。従来の研究では分光器のスリット幅を可能な限り十分狭くして解像度の増加をはかっているが、この方法では SN 比が悪く、それを補うため大電圧、大電流の巨大な電子銃を必要とし、なおかつ長時間にわたる測定をしなければならない。しかしながら、このような強い電子線は流れ場に多大な影響を及ぼすと考えられ、測定方法としては疑問が残るところである。また近年のナノスケール技術に見られるような小形の自由噴流場をこのような大規模な電子線を用いて測定することは測定精度のうえからも問題が多いと考えられる。さらに実験設備の運用や実験の効率化の面から考えても小規模な実験装置で回転スペクトルを短時間で精度よく測定できる手法の開発が重要であると考えられる。本研究では小規模の電子線から発する微弱な蛍光からでも自由噴流場の回転温度を精度よく測定できるよう従来の手法に改良を加え、その方法を用いて実際に窒素の自由噴流場の回転温度を測定した。また得られた結果を従来の方法により得られた結果と比較し、改良した手法の有用性について述べた。さらに実験結果の妥当性の検証のため DSMC 法による自由噴流場の計算を行い、得られた計算結果と実験結果との比較を行った。

* 原稿受付 2002 年 4 月 22 日。

^{*1} 正員, 東北大学流体科学研究所(〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1)。^{*2} 正員, 東京大学大学院工学系研究科(〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1)。

E-mail: tokumasu@ifs.tohoku.ac.jp

2. おもな記号

 $D(K)$: 準位 K の dipole 遷移確率 E : 遷移確率 matrix E_R : 相対回転エネルギー I_K : 準位 K の回転スペクトル強度 K : 回転準位 $N=(N_K)$: 準位 K の(相対)分子数 P_i : i 回 quadrupole 遷移する確率 P : 圧力 $Q(K)$: 準位 K の quadrupole 遷移確率 T : 温度 T_R : 回転温度 λ : 波長 λ_K : 準位 K の回転スペクトルの波長 $\Delta\lambda$: 分光器の分解能 ρ : 相対密度 θ_r : 回転定数

添字

 o : ソース部での値 s : 回転準位のしきい値以降の値 $'$: $N_{\frac{1}{2}}$ 励起状態での値 ∞ : チャンバ内の値

3. 実験装置

本研究では真空チャンバ内に生成した N_2 の自由噴流場に真空チャンバ上部に取付けられた電子銃から電子線を照射し、発生した蛍光を真空チャンバ側面に取付けられた光学系で集めて分光することにより測定点での相対密度や回転温度を測定する。本装置では光学系と電子銃は真空チャンバに固定されており、図1に示すようにソースノズルを x 方向と z 方向に動かすことにより自由噴流場の二次元的な測定を行う。ただ

Fig. 1 Experimental arrangement (top view)

し本論文では一次元測定の結果のみを示す。図1に実験装置概略を示す。

真空チャンバには排気性能 2 000 l/s のターボ分子ポンプと排気性能 4 000 l/min のメカニカルブースタポンプが取付けられ、これにより実験中の真空チャンバ内の圧力は 10^{-2} – 10^{-3} Torr に保たれている。真空チャンバ内の圧力はピラニゲージにより測定を行っている。

電子銃は電圧 9 kV で 0.5~1 mA の電子線を生成することができる。電子線は電子銃に内蔵されたコイルによりその軌道やビーム径を調整することができる。本研究ではビーム径を 1 mm とした。測定点を通じた電子ビームは実験装置下部に取付けられたファラデーカップによって受け止められる。電子銃内部はフィラメントが焼き切れないように圧力を 2.0×10^{-5} Torr 以下に保つ必要がある。そのため電子銃には排気性能 150 l/s のターボ分子ポンプを取付けている。

ソースノズルのオリフィス径は 5 mm とし、ステッピングモータを用いて自由噴流の軸方向に対して垂直方向と水平方向に ± 0.5 mm の精度で移動させることができる。貯気槽の可動範囲は x 方向 100 mm $\times$ z 方向 100 mm である。貯気槽にはヒータが取付けられており、これによりソース温度を 700 K までの範囲で制御することができる。またソース圧はバロトロン真空系により測定を行っている。

光学系は 2 mm 径の光ファイバと二つの 100 mm 径のレンズにより構成されている。図1に示すように発生した蛍光は側面に取付けられた 2 枚の 100 mm 径レンズにより集光され、光ファイバを通して分光器に送られている。光学装置は実験を開始する前にレーザを用いてその軸が測定点を通るように設定されている。本実験では(株)日本分光社製の回折格子形 CT 25 CD を用いている。この分光器はダブル形であり、回折格子は面積 52 mm² に 1 200 本/mm の割合で刻まれている。この分光器の逆分散は 15 nm/mm である。分光器の入口および出口スリットの最小幅は 0.01 mm であり、このときの分光器の分解能は半値幅で 0.05 nm である。この分光器により蛍光は各準位の回転スペクトルに分けられ、印加電圧 1 kV の光電子増倍管(PMP)とプリアンプで電圧信号に変換される。本研究では SN 比と測定時間のバランスから $R=10$ M Ω の抵抗と $C=0.1$ μ F のコンデンサを用い、時定数を $RC=1$ s としている。変換された電圧信号はノイズを除去するためローパスフィルタに通された後ディジタルボルトメータにより測定される。

4. N₂ 基底状態の回転温度の計算

4.1 quadrupole 遷移モデル 実験により得られた各回転スペクトルの強度は N₂⁺ 励起状態の回転エネルギー分布を表している、これから N₂ 基底状態の回転エネルギー分布や回転温度を知るには N₂ 基底状態から N₂⁺ イオンの励起状態への遷移モデルを仮定する必要がある。従来の研究の多くはこの遷移モデルに dipole モデル⁽¹⁾ を用いて N₂ 基底状態の回転エネルギー分布を求めている。しかしこのモデルでは N₂ 分子のイオン化の際にはじき出された低速の電子と N₂⁺ イオンとの相互作用を考慮していないため、このモデルにより計算された回転エネルギー分布は平衡状態でもボルツマン分布にならないことが指摘されている⁽⁴⁾。よって本研究では上記の現象を考慮した quadrupole 遷移モデル⁽⁴⁾ を用いて基底状態の回転エネルギー分布を求めた。以下にこのモデルの概略を示す。

測定された回転スペクトルの強度 $I_{K'}$ より、N₂⁺ 励起状態の準位 K' の相対分子数 $N_{K'}$ は

$$N_{K'} = \frac{2K'+1}{K'} I_{K'}, \dots\dots\dots (1)$$

と計算される⁽⁵⁾。N₂ 基底状態の準位 K の相対分子数を $N=(N_K)$ とベクトル表記すると、これらは N₂ 基底状態の準位 K から N₂⁺ 励起状態の準位 K' への遷移確率 $E=(E_{K'})$ と N₂⁺ 励起状態の準位 K' の相対分子数ベクトル $N'=(N_{K'})$ を用いて

$$N' = EN \text{ or } N = E^{-1}N', \dots\dots\dots (2)$$

と表せる。遷移確率 E は以下の式により求められる⁽⁴⁾。

$${}_K E_{K'} = \sum_{i=i_0(\Delta K)}^{\infty} P_i \{ D^+(K) Z_{i,\Delta K-1}(K+1) + D^-(K) Z_{i,\Delta K+1}(K-1) \}. \dots\dots\dots (3)$$

ここで i_0 は ΔK 準位だけ遷移するために最低限必要な quadrupole 遷移の回数を表しており、

$$i_0(\Delta K) = \frac{1}{2}(|\Delta K| - 1), \dots\dots\dots (4)$$

と求められる⁽⁴⁾。1 回の dipole 遷移について i 回

Table 1 The probability of i quadrupole interactions in addition to the dipole interaction, P_i ⁽⁴⁾

i	P_i	i	P_i
0	0.6961×10^0	1	0.1813×10^0
2	0.5517×10^{-1}	3	0.2142×10^{-1}
4	0.9829×10^{-2}	5	0.5003×10^{-2}
6	0.2614×10^{-2}	7	0.1638×10^{-2}
8	0.1110×10^{-2}	9	0.9014×10^{-3}

quadrupole 遷移をする確率 P_i を表 1 に示す⁽⁴⁾。dipole 遷移確率 $D^+(K)$ および $D^-(K)$ は

$$D^+(K) = \frac{K+1}{2K+1}, \quad \Delta K = +1; \dots\dots\dots (5)$$

$$D^-(K) = \frac{K}{2K+1}, \quad \Delta K = -1, \dots\dots\dots (6)$$

と与えられる⁽⁵⁾。また $Z_{i,\Delta K}(K)$ は準位 K から i 回の quadrupole 遷移で準位が ΔK 遷移する確率を表しており、以下の式で与えられる⁽⁴⁾。

$$Z_{i,\Delta K}(K) = \begin{cases} \delta_{0,\Delta K}; & (i=0) \\ 0; & (\Delta K \text{ odd}) \\ Q^+(K)Z_{i-1,\Delta K-2}(K+2) + Q^0(K)Z_{i-1,\Delta K}(K) + Q^-(K)Z_{i-1,\Delta K+2}(K-2); & (\Delta K \text{ even}) \end{cases} \dots\dots\dots (7)$$

ここで $\delta_{i,j}$ はクロネッカーのデルタである。また $Q(K)$ は quadrupole 遷移確率であり以下の式で与えられる⁽⁴⁾。

$$Q^+(K) = \frac{(K+1)(K+2)}{(2K+1)(2K+3)}, \quad \Delta K = +2;$$

$$Q^0(K) = \frac{K(K+1)}{(2K-1)(2K+3)}, \quad \Delta K = 0;$$

$$Q^-(K) = \frac{K(K-1)}{(2K+1)(2K-1)}, \quad \Delta K = -2. \dots\dots\dots (8)$$

これにより式(3)の遷移確率 E が計算され、N₂ 基底状態の相対分子数 N_K が求められる。

4.2 相対密度、回転温度の計算 本来回転温度とは各準位の相対分子数 N_K が以下のボルツマン分布

$$N_K = N_0(2K+1) \exp\left\{-\frac{K(K+1)\theta_r}{T_r}\right\}, \dots\dots (9)$$

に従っているときの T_r で与えられる。ここで $\theta_r = 2.878$ K は N₂ の回転定数である。しかし 4.1 節の計算により得られた N₂ 基底状態の各準位の相対分子数 N_K は自由噴流場中の強い非平衡性のためボルツマン分布には従っておらず、このような回転温度は定義できない。よって本研究では測定点における回転エネルギーの平均値によりその点での回転温度を定義することにした⁽²⁾。式(9)は

$$\log\left(\frac{N_K}{2K+1}\right) = -\frac{1}{T_r} K(K+1)\theta_r / \ln 10 + \log N_0, \dots\dots\dots (10)$$

と変形される。よって気体が平衡状態の場合、 $E(K)$ を

$$E(K) = K(K+1)\theta_r / \ln 10, \dots\dots\dots (11)$$

と定義して横軸に $E(K)$ を、縦軸に $-\log(N_K/2K+1)$ をプロットすると傾き $1/T_r$ の直線が得られる。

また自由噴流場中の測定点での相対分子数分布は先に述べたように1本の直線では表現できないが、低準位の相対分子数分布と高準位の相対分子数分布はそれぞれ別の直線で表現できることが報告されている⁽⁶⁾。よってある準位以上の相対分子数分布が傾き $1/T_{RS}$ の直線で表現できると仮定し、この回転準位のしきい値を K_s とすれば、 K_s 以上の準位の相対分子数の合計は以下の式で与えられる⁽²⁾。

$$\begin{aligned}\rho_s &= N_0 \int_{K_s-1/2}^{\infty} (2K+1) \exp\left\{-\frac{K(K+1)\theta_r}{T_{RS}}\right\} dK \\ &= N_0 \left(\frac{T_{RS}}{\theta_r}\right) \exp\left\{-\frac{\left(K_s-\frac{1}{2}\right)\left(K_s+\frac{1}{2}\right)}{T_{RS}}\right\} \\ &\dots\dots\dots(12)\end{aligned}$$

さらに K_s 以上の準位にある分子の全回転エネルギーは

$$\begin{aligned}E_{RS} &= N_0 \int_{K_s-1/2}^{\infty} \theta_r K(K+1)(2K+1) \\ &\quad \times \exp\left\{-\frac{K(K+1)\theta_r}{T_{RS}}\right\} dK \\ &= N_0 \left(\frac{T_{RS}}{\theta_r}\right) \left\{\theta_r \left(K_s - \frac{1}{2}\right) \left(K_s + \frac{1}{2}\right) + T_{RS}\right\} \\ &\quad \times \exp\left\{-\frac{\left(K_s - \frac{1}{2}\right)\left(K_s + \frac{1}{2}\right)\theta_r}{T_{RS}}\right\}, \dots\dots\dots(13)\end{aligned}$$

と与えられる。また式(9)より、 $N_{K_s-1/2}$ は

$$N_{K_s-1/2} = 2N_0 K_s \exp\left\{-\frac{\left(K_s - \frac{1}{2}\right)\left(K_s + \frac{1}{2}\right)\theta_r}{T_{RS}}\right\}, \dots\dots\dots(14)$$

と与えられる。よって式(12)と式(13)はそれぞれ

$$\rho_s = \frac{T_{RS}}{\theta_r} \frac{N_{K_s-1/2}}{2K_s}, \dots\dots\dots(15)$$

$$\begin{aligned}E_{RS} &= \left\{\theta_r \left(K_s - \frac{1}{2}\right) \left(K_s + \frac{1}{2}\right) + T_{RS}\right\} \\ &\quad \times \left(\frac{T_{RS}}{\theta_r}\right) \frac{N_{K_s-1/2}}{2K_s}, \dots\dots\dots(16)\end{aligned}$$

と変形される。式中の $N_{K_s-1/2}$ は高準位の相対分子数分布をフィッティングして得られた直線から読取る。これらを用いて相対密度と全回転エネルギーはそれぞれ

$$\rho = \sum_{K=0}^{K_s-1} N_K + \rho_s, \dots\dots\dots(17)$$

$$E_R = \sum_{K=0}^{K_s-1} \theta_r K(K+1) N_K + E_{RS}, \dots\dots\dots(18)$$

と与えられる。これらを用いて回転温度は

$$T_R = E_R / \rho, \dots\dots\dots(19)$$

と定義される。

4.3 回転スペクトル強度の補間 本研究では R-

Branch の回転スペクトルを測定しているので準位 $K'=0$ の分子からの蛍光 $I_{K'=0}$ を測定することができない。しかし準位 $K'=0$ に存在する分子数は多く回転温度にも大きく影響するためこの $I_{K'=0}$ を求める必要がある。さらに quadrupole 遷移を考慮した場合、準位 $K < 19$ にある分子が準位 $K' > 19$ にある分子に遷移する可能性があるため準位 $K' > 19$ にある分子の分子数についても求めなければならない。本研究では以下に示すような補間を行ってこれらの値を求めた。 N_2 基底状態の分子数分布が温度 T のボルツマン分布に従っていると仮定すると、式(9)中で

$$B_K(T) = (2K+1) \exp\{-K(K+1)\theta_r/T\}, \dots\dots\dots(20)$$

とすることにより準位 K' の分子からの R-Branch の蛍光の強度は以下の式で与えられる⁽⁴⁾。

$$I_{K'} = K' G_{K'}(T) \exp\left\{-\frac{K'(K'+1)\theta_r}{T}\right\} \dots\dots(21)$$

ここで $G_{K'}(T)$ は

$$G_{K'}(T) = \frac{1}{B_{K'}(T)} \sum_{K=0}^{\infty} K E_K B_K(T), \dots\dots\dots(22)$$

である。式(21)は

$$-\log\left(\frac{I_{K'}}{K' G_{K'}(T)}\right) = \frac{1}{T} E(K'), \dots\dots\dots(23)$$

と変形できる。この式より分子数分布がボルツマン分布であれば横軸に $E(K')$ 、縦軸に $-\log\{I_{K'}/K' G_{K'}(T)\}$ をとったプロットは1本の直線で表現される。実際には自由噴流場中の強い非平衡性のため分子数分布は1本の直線では表現されず、低準位、高準位の分子数分布が別々の直線で表現される。式(1)と式(21)から N_2 励起状態における相対分子数は

$$N_{K'} = (2K'+1) G_{K'}(T) \exp\left\{-\frac{K'(K'+1)\theta_r}{T}\right\}, \dots\dots\dots(24)$$

と与えられる。低準位の回転スペクトルから式(24)の T を決定すれば $I_{K'=0}$ を求めることができる。また高準位の回転スペクトルから式(24)の T を決定すれば $I_{K'>19}$ を求めることができる。本研究では補間により $K' < 39$ までの回転スペクトルの強度を求めた。

5. 回転スペクトルの測定と回転温度の計算

5.1 回転スペクトルの測定 本研究では従来用いられてきたものに比べて電流値を1/10程度に抑えた小形の電子線を用いることにより電子線が流れ場を与える影響を抑えている。しかし蛍光の強度は電子線の電流値に比例するため、このままではSN比が悪く高準位の回転スペクトルまで測定できない。そのため

Fig. 2 390.641 nm Hg line and the fitting function given by Eq. (25)

Fig. 3 (a) Rotational spectra and the fitting function. Slit width is set to 0.02 mm. (b) Rotational spectra at the same condition. Slit width is set to 0.01 mm

本研究では分光器のスリット幅を最大の分解能が得られる 0.01 mm から 0.02 mm に広げて実験を行った。得られた Hg の 390.641 nm のスペクトルを図 2 の太線に示す。一般にスペクトルにはさまざまな要因により広がりが生じ⁽⁷⁾、その重ね合わせにより得られた波形が検出されるため得られるスペクトルがどのような形状になるかは予測できない。本研究では形が類似し

Table 2 Wavelength of the rotational spectra in R-branch⁽⁵⁾

K	Wavelength, nm	K	Wavelength, nm
1	391.081	2	391.012
3	390.939	4	390.862
5	390.779	6	390.693
7	390.602	8	390.506
9	390.406	10	390.301
11	390.192	12	390.078
13	389.959	14	389.836
15	389.709	16	389.577
17	389.440	18	389.299
19	389.154		

ていることのみを考慮してスペクトルの形状をガウス分布を用いてフィッティングした。図 2 の点線にフィッティングによって得られたガウス分布を示す。図 2 より分光器を調整することにより得られたスペクトルの形状はガウス関数でよく近似できることがわかる。また測定の結果、この条件での分解能(分布の半値幅)は 0.07 nm であることが明らかとなった。この条件で自由噴流場中の $z=20$ mm での回転スペクトルを測定した。ソース圧は $P_0=1.29$ Torr でありソース温度は $T_0=350$ K とした。また背圧は $P_\infty=0.008$ Torr とした。その一例を図 3(a) に示す(以後これを“case A”とする)。測定波長範囲は 388.8 nm から 391.2 nm である。この波長範囲には $K=19$ までの回転スペクトルが含まれる。図 3 からわかるように、この分解能では個々の回転スペクトルは完全に分離されず、重なり合って測定されることがわかる。本研究では準位 K の回転スペクトルの量を半値幅が $\Delta\lambda=0.07$ nm になることを考慮して以下に示すフィッティング関数により求めた。

$$f_K(\lambda) = A_K \exp \left[-\ln 2 \left\{ \frac{2(\lambda - \lambda_K)}{\Delta\lambda} \right\}^2 \right] \quad \dots\dots\dots (25)$$

ここで λ は波長であり A_K は調整パラメータである。 λ_K は準位 K の回転スペクトルの波長であり表 2 によって与えられる。得られたフィッティング関数を図 3(a) の点線に示す。図 3(a) よりフィッティング関数は測定された回転スペクトルとよく一致することがわかる。また比較のため同じ回転スペクトルを分光器の入口および出口スリットの幅をこの分光器の最小分解能が得られる 0.01 mm にして測定した結果を図 3(b) に示す(以後これを“case B”とする)。図 3(b) より測定されたスペクトルの半値幅、すなわち分解能

Fig. 4 Plot of $-\log(N_K/g_K)$ vs $E(K)$ at $z=10$ mm

Fig. 6 Comparison of the rotational temperature distribution along the axis of a free jet obtained by the quadrupole model and the dipole model

Fig. 5 (a) Relative number density distribution along the jet axis of free jet. (b) Rotational temperature distributions along the jet axis of free jet. The character A~D denote the measured points of Fig. 7

は case B のほうがよいが, case B では高準位の回転スペクトルが明りょうに測定されていないことがわかる。

各スペクトルの強度はそれぞれの fitting 関数を $(-\infty, \infty)$ の範囲で積分することにより得られる。これにより得られた強度を用いて各準位 K について $E(K)$ に対する $-\log(N_K/g_K)$ をプロットした。ここで $g_K=2K+1$ は準位 K の縮退度である。その結果を

図 4 に示す。図 4 より各点は自由噴流場の強い非平衡のため 1 本の直線上にはのっていないことがわかる。本研究では 4 章で述べた K_s を 13 とした。 K_s の値については後に検証を行う。得られた直線についても図 4 に示す。図 4 より K_s 以上の点は非常によく 1 本の直線で表現されていることがわかる。

5・2 回転温度の計算およびデータの検証 4 章で述べた方法を用いて自由噴流場中の相対密度分布と回転温度分布を計算した。実験結果のばらつきの程度を確認するため、同一条件における回転温度を 50 回測定しその分散値を計算した。その結果 case A では分散値が 11.6 K となった。同様の測定を case B について行ったところ分散値が 166.6 K となり case A の 14.3 倍となった。これは case B では高準位の回転スペクトルがノイズに埋もれてしまい正確な測定ができなかったためと考えられる。これにより本研究で述べた手法の有効性が確認された。

自由噴流場の軸上の相対密度分布および回転温度分布をそれぞれ図 5(a), (b) に示す。黒丸は $K_s=13$ としたときの実験結果を表している。 K_s の値による回転温度の依存性を確認するため、 $K_s=11$ として得られた回転温度分布を図 5(b) の白丸に示す。図 5 より、両者の回転温度の差は実験値のばらつき(約 11 K)に比べて小さいことがわかる。さらに非平衡の程度を見積もるため低準位 ($K < 9$) の回転スペクトルにより得られた温度と高準位 ($K > 13$) の回転スペクトルにより得られた温度との範囲についても図 5 に示す。図 5 からわかるように二つの温度の幅は回転温度が低いときに大きくなり、回転温度が回復するにつれて小さくなっていることがわかる。

図 6 に同一のスペクトルから quadrupole model に

Fig. 7 Plot of $-\log(N_K/g_K)$ vs $E(K)$ for the nitrogen flow. (A) $z=0$ mm. (B) $z=10$ mm. (C) $z=36$ mm. (D) $z=82$ mm

より得られた回転温度と dipole model により得られた回転温度を示す。図 6 より quadrupole model により得られた温度は dipole model により得られた温度

Fig. 8 Comparison of the rotational temperature distribution along the axis of a free jet

Fig. 9 Comparison of the rotational energy distribution

に比べて約 10 K 程度低く見積もられることがわかる。dipole model では高準位の分子数が過大評価されることが報告されており⁽⁴⁾、そのため回転温度が高く見積もられると考えられる。

図 5(b) に示された四つの測定点での回転エネルギー分布を図 7 に示す。図 7 中実線が高準位 ($K > 13$) の回転スペクトルにより得られた直線を、点線が低準位 ($K < 9$) の回転スペクトルにより得られた直線を表している。また T_R は式(19)により得られた回転温度を、 T_H および T_L はそれぞれ図の実線および点線のこう配により得られた回転温度を表している。図 7 よりオリフィス出口付近では T_L と T_H の差が小さく、かつ回転エネルギー分布もボルツマン分布に近いが、オリフィス出口から離れるに従って $E(K)$ に対する $-\log(N_K/g_K)$ のプロットが 1 本の直線からはずれて T_L と T_H の差が大きくなり、回転エネルギー分布がその温度におけるボルツマン分布からずれていくことがわかる。しかしながら回転温度の最下点をすぎるとオリフィス出口からの距離の増加に伴い回転エネルギー分布はボルツマン分布に再び近づく。Koura は自

由噴流場中の回転緩和プロセスをマスター方程式を用いて解析しており、回転温度が低いところでは高準位の回転スペクトルが増加することにより回転エネルギー分布がボルツマン分布からずれることを報告している⁽⁶⁾が、本実験結果はこの傾向とよく一致している。

この実験結果の妥当性を検証するために同様の流れ場を Dynamic Molecular Collision (DMC) model⁽⁸⁾を用いた Direct Simulation Monte Carlo (DSMC)法により計算した。DMC model は統計的な仮定を用いず、力学的な観点からエネルギー遷移確率を決定しているため非平衡を有する流れ場の計算に有効であることが報告されている⁽⁸⁾。これにより計算された回転温度分布を図8に示す。図8より実験結果と計算結果はよく一致しており実験結果の妥当性が検証されている。またオリフィス出口から12 mmでの回転エネルギー分布を図9に示す。図9より計算により得られた回転エネルギー分布についても実験結果とよく一致していることがわかる。

6. 結 論

微弱な蛍光からでも自由噴流場の相対密度や回転温度を精度よく測定できるよう従来の測定手法を改良し、その妥当性について検証を行った。本手法では電子銃の電圧や電流値を小さくできることにより流れ場に強い影響を与えずに測定することが可能である。本手法では分光器内の平面鏡の端の部分に覆いをかぶせて短波長側に広がる分布を除去し、SN比を増加させるためにスリット幅を広げて測定を行った。これによりさまざまな準位のスペクトルが重なり合った分布が得られるが、各スペクトルの形状を半値幅をそのスリット幅での分解能に合せたガウス関数で近似し重なり合ったスペクトルから各スペクトルの強度を求めた。これ

により高準位での蛍光の強度も正確に測定できるようになり、実験データのばらつきもスリット幅を狭くして測定を行ったものに比べて大幅に減少した。これらの実験結果を検証するため同様の流れ場を DMC モデルを用いた DSMC 法により計算し、得られた計算結果と実験結果との比較を行った。その結果、計算結果は実験結果とよく一致しており実験結果の妥当性が検証された。またマスター方程式による自由噴流場中の回転緩和プロセスの解析結果との比較においても定性的な一致が見られた。

本研究の装置の立ち上げの際に東京大学工学部助手の青木功氏に多大な助言をいただいた。ここに厚く謝意を表す。

文 献

- (1) Muntz, E., P., Static Temperature Measurements in a Flowing Gas, *Phys. Fluids*, **5** (1962), 80-90.
- (2) Robben, F. and Talbot, L., Experimental Study of the Rotational Distribution Function of Nitrogen in a Shock Wave, *Phys. Fluids*, **9** (1966), 653-662.
- (3) Ashkenas, H., Rotational Temperature Measurements in Electron-Beam Excited Nitrogen, *Phys. Fluids*, **10** (1967), 2509-2520.
- (4) Coe, D., Robben, F., Talbot, L. and Cattolica, R., Rotational Temperatures in Nonequilibrium Free Jet Expansion of Nitrogen, *Phys. Fluids*, **23** (1980), 706-714.
- (5) Herzberg, G., *Molecular Spectra and Molecular Structure, I, Spec of diatomic molecules D.*, (1950), 66-145, Van Nostrand Company, Inc., Princeton, New Jersey.
- (6) Koura, K., Rotational Distribution of N₂ in Ar Free Jet, *Phys. Fluids*, **24** (1981), 401-405.
- (7) 南茂雄・合志陽一編, 分光技術ハンドブック (1990), 9-14, 朝倉書店.
- (8) Tokumasu, T. and Matsumoto, Y., Dynamic Molecular Collision (DMC) Model for Rarefied Gas Flow Simulations by the DSMC Method, *Phys. Fluids*, **11** (1999), 1907-1920.