

## REMPIによる超希薄気体流計測に関する研究\*

### (超音速自由分子流における REMPI スペクトルの解析)

森 英 男<sup>\*1</sup>, 石 田 敏 彦<sup>\*2</sup>  
青 木 義 典<sup>\*3</sup>, 新 美 智 秀<sup>\*2</sup>

## A Study on REMPI as a Measurement Technique for Highly Rarefied Gas Flows

### (Analyses of Experimental REMPI Spectra in Supersonic Free Molecular Flows)

Hideo MORI<sup>\*4</sup>, Toshihiko ISHIDA,  
Yoshinori AOKI and Tomohide NIIMI

<sup>\*4</sup> Nagoya University, Dept. of Electronic-Mechanical Engineering,  
Furo-cho, Chikusa, Nagoya, Aichi, 464-8603, Japan

A measurement technique of thermodynamic variables with high sensitivity is strongly demanded for analyses of highly rarefied gas flows, gas-surface interaction, and so on. REMPI (Resonantly Enhanced Multiphoton Ionization) is a powerful optical tool because of its high sensitivity even in highly rarefied gas flows and ability to measure nonequilibrium among internal (translational, vibrational, and rotational) energy. In this paper, the MEMPI system is constructed and the REMPI spectra are measured at the center line of a free molecular flow. The fundamental properties of REMPI signal are also described. A method of Boltzmann plot using the spectral lines of different branches is proposed, determining electronic transition dipole moments in Hönl-London factors.

**Key Words:** Rarefied Gas, Flow Measurements, Laser-aided Diagnostics, REMPI, Nitrogen, Boltzmann Plot

## 1 緒言

近年の航空宇宙技術および超高真空技術の発達に伴い、超希薄気体流の解析および材料表面における気体分子の挙動調査が非常に重要となり、超希薄気体流へ適用可能な計測法の必要性が高まっている。分光学的手法を用いた気体流の物理量計測法は、流れ場を乱さないことや気体分子の選択的計測が可能であること、さらには非平衡な流れ場の計測も可能であることなど優れた特徴を有するため、これまで電子線蛍光法 (Electron Beam Fluorescence: EBF)<sup>(1)</sup>、レーザ誘起蛍光法 (Laser Induced Fluorescence: LIF)<sup>(2)</sup> やコヒーレント・アンチストークス・ラマン散乱法 (Coherent Anti-Stokes Raman Scattering: CARS)<sup>(3)</sup> などの計測法が開発され、それぞれに適した数密度範囲および用途によって使い分けられている。しかし、これらの中で最も感度の良い LIF 法においても  $10^{12}$  molecules/cm<sup>3</sup> の分子数密度が必要であり<sup>(1)</sup>、超希薄気体流の計測にはさらに高感度の分光学的計測法が必要である。

本研究では、超希薄気体流に適用可能な計測法として、共鳴多光子イオン化法 (Resonantly Enhanced Multiphoton

Ionization: REMPI) に着目した。REMPI は多光子励起により気体分子をイオン化する手法であり、イオン化の途中に実在の共鳴準位を介するため、イオン化確率が高い。REMPI は検出感度が非常に高いため、LIF 法など従来の計測法では困難であった、数密度  $10^{12}$  molecules/cm<sup>3</sup> 以下の超希薄流の温度や数密度などの物理量計測に利用することが可能である。これまでに、窒素を対象とした REMPI では、2R+2 REMPI で  $10^9$  molecules/cm<sup>3(4)</sup>、2R+1 REMPI で  $10^5$  molecules/cm<sup>3(5)</sup> の感度を有することが報告されている。

前報<sup>(6)</sup> では、シミュレーションによって、窒素を対象とした 2R+2 REMPI スペクトルの温度依存性などの基本特性および温度計測に用いるスペクトル線の選択方法を明らかにした。しかし、従来のボルツマンプロットでは、異なるブランチに属するスペクトル線を用いることができず、プロットに利用できるスペクトル線の本数が限定され、温度計測の精度を向上させることが困難であった。これは、2光子ヘンル・ロンドン因子に含まれる電子遷移双極子モーメントの値を理論的に求めることが非常に困難であることに起因している。

本研究では、2R+2 REMPI による窒素の回転温度計測を行うための実験装置を構成し、超音速自由噴流の中心線上における REMPI スペクトルの測定を行うとともに、前報<sup>(6)</sup> で提案した方法によるボルツマンプロットを用い

\* 原稿受付 1999年7月15日。

<sup>\*1</sup> 正員, 名古屋大学大学院 (〒464-8603 名古屋市中種区不老町)。

<sup>\*2</sup> 正員, 名古屋大学大学院工学研究科。

<sup>\*3</sup> 名古屋大学大学院。

E-mail: mori@suelab.nuem.nagoya-u.ac.jp

で温度計測を行った。また、本研究で構成した実験系における REMPI 信号の入射光強度依存性、数密度依存性および温度計測が可能な数密度限界を調査した。さらに、2光子ヘンル・ロンドン因子における O 枝と P 枝の電子遷移双極子モーメントの比を実験的に求めることにより、これまでは不可能であった、異なるブランチに属する複数のスペクトル線を用いたボルツマンプロットを可能にした。さらに、これにより理論スペクトルを実験スペクトルへフィッティングさせることを可能にし、スペクトルフィッティングの手法による温度計測の可能性を示した。

## 2 2R+2 N<sub>2</sub>-REMPI スペクトル

本研究で対象とする 2R+2 N<sub>2</sub>-REMPI 過程の模式図を図 1 に示す。2R+2 N<sub>2</sub>-REMPI では、基底準位 ( $X^1\Sigma_g^+$ ) の窒素分子を 2 光子吸収によって共鳴準位 ( $a^1\Pi_g$ ) に励起し、さらに 2 光子吸収によりイオン化する。2R+2 REMPI は 4 光子吸収過程であるため、入射光強度が十分弱いときにはイオン信号強度は入射光束密度の 4 乗に比例するが、入射光がある程度強く、共鳴準位へ励起された分子のほぼ全てがイオン化される条件下では、REMPI は基底準位からの 2 光子共鳴過程を反映するため、イオン信号強度は光束密度の 2 乗に比例する<sup>(6)</sup>。このとき、REMPI 信号のスペクトルは基底準位の内部エネルギー分布を反映するので、測定された REMPI スペクトルを解析することにより、窒素の回転温度など、内部エネルギーに関する温度の計測が可能となる。

入射光強度が一定のとき、REMPI 信号の回転スペクトル線強度  $I_{J',J''}$  は次式で表される<sup>(4),(7)</sup>。

$$I_{J',J''} = Cg(J'')S(J', J'') \exp(-E_{rot}/kT_{rot}) \quad (1)$$

ここで、 $C$  は回転準位に依存しない係数(レーザー光束、数密度、フランク・コンドン因子など)である。 $g(J'')$  は核スピン縮退度であり、窒素の場合は  $J''$  が奇数のとき 3、偶数のとき 6 となる。 $E_{rot}$  は分子の回転エネルギー、 $k$  はボルツマン定数、 $T_{rot}$  は窒素の回転温度である。

$S(J', J'')$  は窒素の  $a^1\Pi_g \leftarrow X^1\Sigma_g^+$  遷移における 2 光子ヘンル・ロンドン因子である。直線偏光を照射した場合の

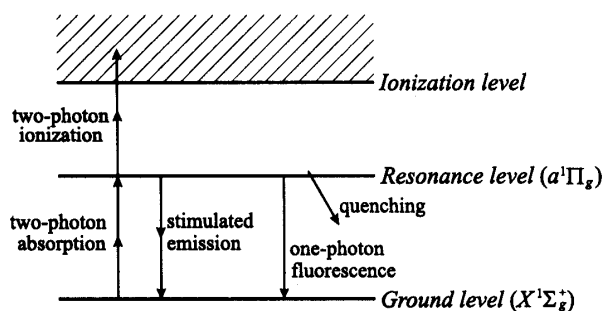


Fig. 1 Modeling of 2R+2 N<sub>2</sub>-REMPI

Table 1 Two-photon Hönl-London factors of nitrogen for the  $a^1\Pi_g \leftarrow X^1\Sigma_g^+$  transition using linearly polarized light

Branch	$S(J'')$
O( $\Delta J = -2$ )	$M(O)J''(J'' - 2)/15(2J'' - 1)$
P( $\Delta J = -1$ )	$M(P)(J'' + 1)/30$
Q( $\Delta J = 0$ )	$M(Q)(2J'' + 1)/10(2J'' - 1)(2J'' + 3)$
R( $\Delta J = 1$ )	$M(R)J/30$
S( $\Delta J = 2$ )	$M(S)(J'' + 1)(J'' + 3)/15(2J'' + 3)$

窒素の 2 光子ヘンル・ロンドン因子の値<sup>(7)-(9)</sup>を表 1 に示す。表 1 の  $M(\Delta J)$  は電子遷移双極子モーメントの積で表される定数であり、ブランチの種類毎に異なる値を持つが、 $J''$  の値には依存しない(表 1 において、 $\Delta J = -2, -1, 0, 1, 2$  はそれぞれ O, P, Q, R, S 枝に対応し、これらに対応する  $M(\Delta J)$  を  $M(O), M(P), M(Q), M(R), M(S)$  と記述する)。一般的に、2R+2 REMPI などの基底準位から共鳴準位への多光子遷移における、仮想準位を介した電子遷移双極子モーメントは未知であるため、 $M(\Delta J)$  を理論的に計算することは不可能である<sup>(9)</sup>。

スペクトル線強度  $I_{J',J''}$  と回転エネルギー  $E_{rot}$  の関係は式 (1) で表されるので、測定された REMPI スペクトルを用いてボルツマンプロットを行うことにより窒素の回転温度が計測できる。上述の理由により、異なるブランチに属する 2 光子ヘンル・ロンドン因子の  $M(\Delta J)$  が未知のため、通常ボルツマンプロットには同一のブランチに属するスペクトル線のみが利用されるが、各ブランチの  $M(\Delta J)$  の値を実験的に求めることができれば、異なるブランチのスペクトル線を用いたボルツマンプロットが可能になる。すなわち、これによりボルツマンプロットに利用するスペクトル線の本数を増やすことが可能になり、その結果としてボルツマンプロットの精度が向上すると考えられる。

## 3 実験系

本研究で用いた実験系の概略を図 2 に示す。

真空チャンバの排気には 2 つのターボ分子ポンプを並列に配置した。測定対象の窒素気体は出口直径  $D = 0.50\text{mm}$  の音速ノズルを介してチャンバ内で膨張させ、窒素の超音速自由噴流を形成する。貯気室内圧力は  $0.60\text{Torr}(80\text{Pa})$  とする。このとき、貯気室内温度  $294\text{K}$  において、チャンバ内圧力は  $3.3 \times 10^{-5}\text{Torr}(4.4 \times 10^{-3}\text{Pa})$  となる。

レーザー光源には Nd-YAG レーザ (Spectra-Physics, DCR-3D(10)) の第二高調波で励起した色素レーザー (Spectra-Physics, PDL-2, 色素 Rhodamine 6G) を使い、BBO 結晶によって得られる色素レーザーの第二高調波(波長  $283.6\text{nm}$  付近)を利用した。焦点距離  $120\text{mm}$  の石英

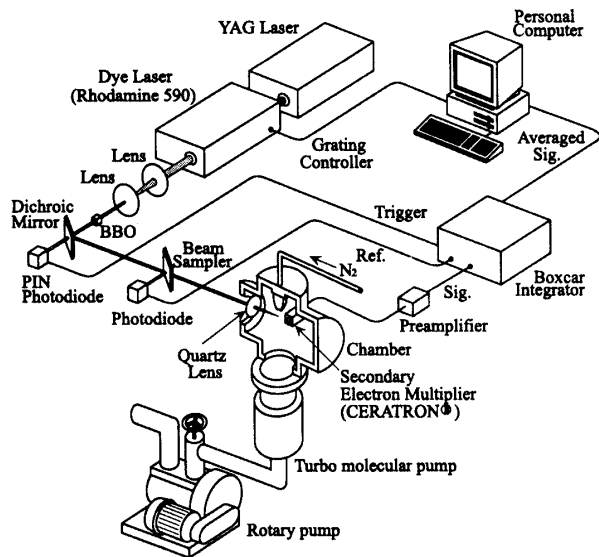


Fig. 2 Experimental apparatus

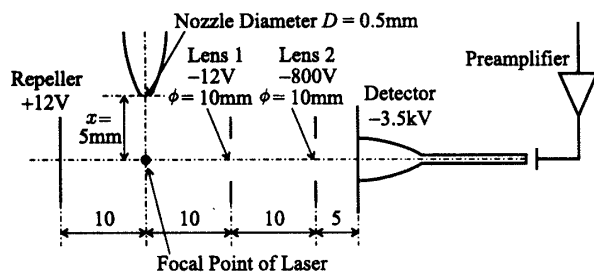


Fig. 3 Detection system

レンズを用いて、上述の超音速自由噴流の中心線上の点において入射レーザー光を集光した。このとき、焦点におけるビーム径は  $1.0 \times 10^{-4} \text{m}$  となる。レーザー強度は  $11.3 \text{mJ/pulse}$ 、発振周波数は  $10 \text{Hz}$  であり、1パルスの持続時間は  $7 \text{ns}$  である。これより、入射光の波長が  $283.6 \text{nm}$  のとき、焦点位置における平均レーザー光束密度は  $2.94 \times 10^{32} \text{photons/m}^2 \cdot \text{s}$  となる。

$\text{N}_2^+$  イオンの検出には二次電子増倍管(セラトロン<sup>®</sup>、村田製作所、EME-2061C)を用いた。なお、イオンの検出効率を上げるために、電極板(レンズ)を用い、図3に示すような検出系を構成した。レンズ穴の径は二次電子増倍管の口径と同じ  $10 \text{mm}$  とした。また、イオンの検出効率が最大になるように、リペラー、レンズ、二次電子増倍管の印加電圧を調整した。その結果、リペラー・レンズ1・レンズ2・二次電子増倍管の印加電圧は、それぞれ  $+12 \text{V}$ 、 $-12 \text{V}$ 、 $-800 \text{V}$ 、 $-3.5 \text{kV}$  とした。

検出したイオン電流信号は減衰しやすいため、電流入力プリアンプ(エヌエフ回路設計ブロック、LI-76、利得  $10^4 \text{V/A}$ ) で信号増幅およびインピーダンス変換を行った。増幅された信号はボックスカー積分器(エヌエフ回路設計ブロック、BX531) で積算および平均化を行い、パーソナルコンピュータのディスクに記録した。

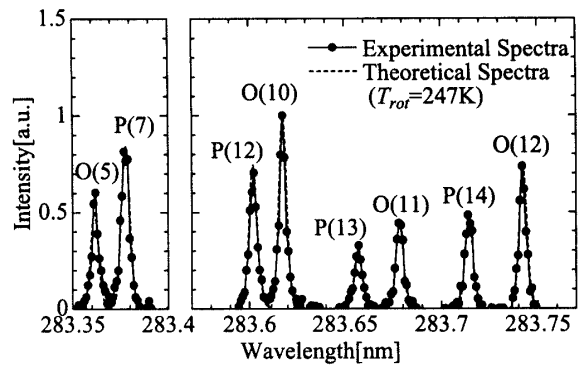


Fig. 4 Experimental REMPI spectrum

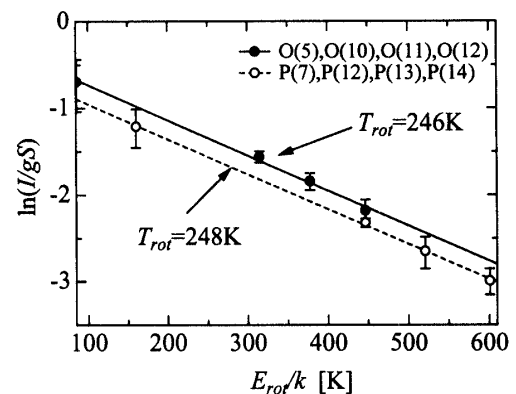


Fig. 5 Boltzmann plot using REMPI spectra

スペクトルの測定では、入射レーザー光の波長を  $0.001 \text{nm}$  刻みで掃引し、各波長ごとに  $128$  個の信号パルスの強度を測定し、これを積算した。

## 4 結果及び考察

**4.1 REMPI スペクトル** 前章で示した実験系を用いて、 $2\text{R}+2\text{N}_2$ -REMPIの  $(v', v'') = (1, 0)$  バンドにおけるスペクトルを測定した。図4は、噴流の中心線上のノズル下流位置  $x = 5.0 \text{mm}$  ( $x/D = 10$ ) において測定した(図3参照)REMPI スペクトルである。縦軸は  $\text{O}(10)$  のスペクトル線強度で規格化した信号強度、横軸は入射レーザー光の波長である。貯気室内温度は  $294 \text{K}$  であり、計測点における数密度は  $1.6 \times 10^{13} / \text{cm}^3$  である。なお、波長  $283.4 \sim 283.57 \text{nm}$  の範囲に存在するスペクトル線は互いに重なり合っており、これらのスペクトル線を利用したボルツマンプロットは不可能なため、本研究ではこの波長範囲におけるスペクトルの測定を行っていない。

$\text{O}(5)$ 、 $\text{O}(10)$ 、 $\text{O}(11)$ 、 $\text{O}(12)$  および  $\text{P}(7)$ 、 $\text{P}(12)$ 、 $\text{P}(13)$ 、 $\text{P}(14)$  のスペクトル線(ピーク位置における強度)を利用してボルツマンプロットを行い、計測点における回転温度を求めた。ボルツマンプロットの結果を図5に示す。縦軸を  $\ln(I/gS)$ 、横軸を  $E_{\text{rot}}/k$  としたグラフ上にこれらのスペ

クトル線強度と回転エネルギーとの関係をプロットし、直線による最小二乗近似を行った。その直線の傾きが  $-T_{rot}^{-1}$  となることを利用して、計測点における回転温度を求めた。その結果、O 枝を用いた場合において回転温度  $T_{rot} = 246\text{K}$ 、P 枝を用いた場合において  $T_{rot} = 248\text{K}$  と求められた。これより、O 枝と P 枝のどちらを用いた場合においても、ほぼ同じ回転温度の値が求められることが確認された。

## 4.2 REMPI 信号の入射光強度依存性

O(5), P(7), O(10), P(12) における REMPI 信号の入射光強度依存性を図 6 に示す。図の横軸は入射レーザー光強度、縦軸は信号強度であり、両対数スケールで示した。図中には、入射光強度と信号強度の関係を最小二乗近似して得られた直線を記してある。この直線の傾きがほぼ 1.7 から 2.0 の範囲にあることから、本研究で測定した REMPI 信号強度が入射光強度のほぼ 2 乗に比例していることが分かる。よって、2 章で述べたように、本計測システムのレーザー強度では共鳴準位へ励起された分子のほぼ全てがイオン化されるため、REMPI スペクトルが基底準位の回転エネルギー分布を反映していることがわかる。

なお、本研究において、入射光強度の揺らぎの影響をなくすため、入射光強度を用いて信号強度の補正を行ったが、図 6 および 4.4 節で示す調査の結果、信号強度を入射光強度の 1.7 乗で規格化するのが最適であることが明らかとなった。そのため、本論文で示した REMPI 信号強度およびスペクトルは、すべて入射光の 1.7 乗で規格化している。

依存性の次数が 2 より小さくなるのは、レーザーの焦点位置において、レーザー強度が時間的および空間的に均一ではなく、ほぼガウス型に近い形状の分布を持っているため、最も強度が高い中心部分において、2 光子吸収励起が飽和していることが原因であると思われる。

## 4.3 REMPI 信号の数密度依存性および検出感度

### 4.3.1 温度計測が可能な数密度限界

貯気室内圧力を調節することにより計測点における数密度を変化させ、O(10) および P(12) のスペクトル線における REMPI 信号強度の数密度依存性および測定が可能な数密度限界を調査した。

O(10), P(12) における REMPI 信号強度の窒素分子数密度に対する依存性を図 7 に示す。横軸は測定位置における窒素の数密度、縦軸は信号強度である。この図より、本研究で測定した REMPI 信号強度が数密度に対してほぼ線形に変化することが分かる。

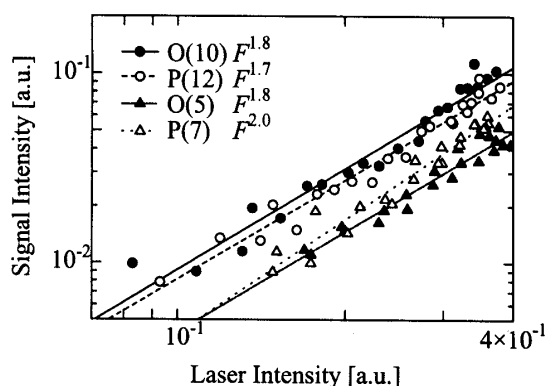


Fig. 6 Dependence of REMPI signal on laser intensity

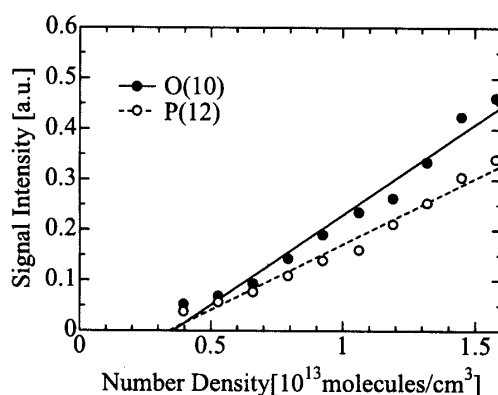


Fig. 7 Dependence of REMPI signal intensity on number density

数密度  $1.6 \times 10^{13}/\text{cm}^3$ ,  $5.3 \times 10^{12}/\text{cm}^3$  および  $4.0 \times 10^{12}/\text{cm}^3$  における REMPI スペクトルを図 8, 9 に示す。横軸は入射レーザー光の波長、縦軸は O(10) のスペクトル線強度で規格化した信号強度である。図 9 は図 8 の数密度  $5.3 \times 10^{12}/\text{cm}^3$  と  $4.0 \times 10^{12}/\text{cm}^3$  に対して縦軸のスケールを拡大したものである。これらの図において、数密度  $4.0 \times 10^{12}/\text{cm}^3$  で S/N がほぼ 1 となり、REMPI スペクトルが不明瞭になる。これより、本研究で構成した系において、これらのスペクトル線が測定可能な数密度限界はおおよそ  $4.0 \times 10^{12}/\text{cm}^3$  であることが分かる。O(5) や P(7) など、ボルツマンプロットに利用する他のスペクトル線の強度は、O(10) および P(12) と同程度であるので、温度計測が可能な数密度限界もおおよそ  $4.0 \times 10^{12}/\text{cm}^3$  であるといえる。これは、LIF 法と同程度の感度であるが、次項に示すような実験系の改良を行うことにより、感度はさらに向上すると思われる。

### 4.3.2 検出感度を高めるための手法

検出感度を高めるためには、入射光強度を増加させることや、検出器のゲインを増加させることが挙げられる。しかし、本研

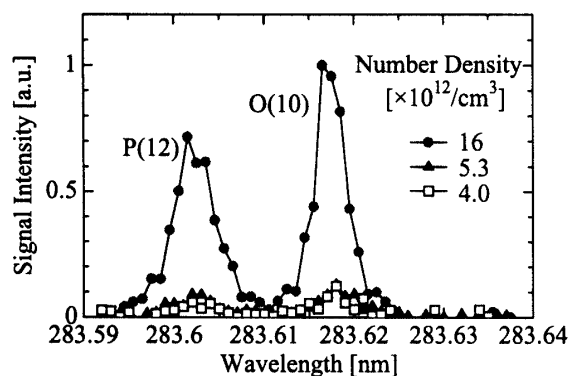


Fig. 8 Dependence of REMPI spectra on number density

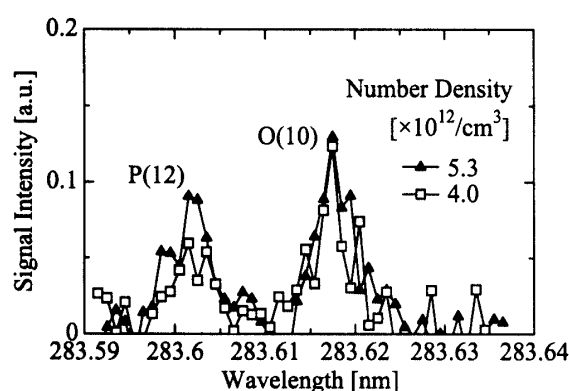


Fig. 9 REMPI spectra at low number density

究の系において、二次電子増倍管のゲインを増加させるために印加電圧を上げたところ、バックグラウンドノイズを生じ、結果的にS/Nが悪化した。このバックグラウンドノイズの原因として、チャンバの粗引きに使用しているロータリーポンプのオイル蒸気が微量にチャンバ内に存在し、このオイル蒸気がイオン化するためにノイズが生じることが考えられる。このようなノイズを減少させるためには、粗引きに用いるポンプを変えるなど排気系の改良を行うほかに、イオン検出器を計測点から遠ざけることにより、分子質量の違いによる検出器への到達時間の差を利用して窒素イオンと高分子イオンを分離する方法を用いることもできる。ただし、検出器を遠ざけることによってイオン検出の感度が減少する問題が生じる。また、ポンプの排気量が小さくチャンバ内圧力が高いため、イオン検出器である二次電子増倍管においてイオンフィードバック(信号増幅過程において二次電子増倍管内に発生した電子により気体分子がイオン化される現象)によるノイズが生じる問題も起きる。これらの問題の対策としては、イオン検出部で差動排気を行い、検出部における真空度を良くすることが必要となる。

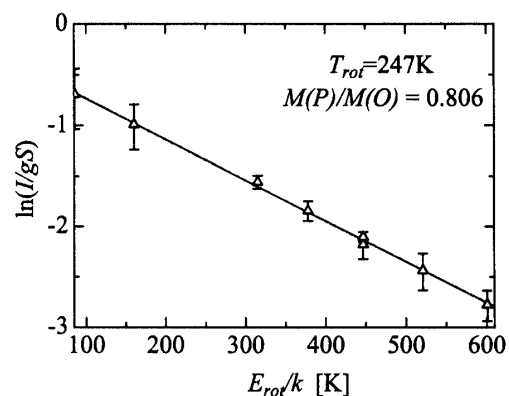


Fig. 10 Boltzmann plot using REMPI spectra (including O and P branches)

**4.4 複数のブランチを利用したボルツマンプロット** 前報<sup>(6)</sup>および4.1節で示した温度計測の手法では、ボルツマンプロットに利用する回転スペクトル線の本数が少ないため、スペクトル測定におけるわずかな計測誤差がボルツマンプロットに及ぼす影響が大きい。これを解決するためには、ボルツマンプロットに使用するスペクトル線の本数を増やす必要があるが、スペクトル線同士の重なりの影響やスペクトル線自身の強度の問題があるため、ボルツマンプロットに利用できるスペクトル線は非常に限定されている。

2章で述べたように、表1の2光子ヘルム・ロンドン因子における  $M(\Delta J)$  の値の比を求めることができれば、異なるブランチのスペクトル線を用いたボルツマンプロットが可能になり、計測誤差が求められる温度に及ぼす影響を小さくすることが期待できる。そこで、本研究では、 $M(\Delta J)$  の値の比を実験的に求めることにより、O枝とP枝の両方のスペクトル線を同時に利用したボルツマンプロットを可能にした。図5のボルツマンプロットにおいて、 $M(P)/M(O)$  をパラメータとして変化させ、O枝およびP枝の両者のスペクトル線強度の実験データを用いた最小二乗近似を行い、実験データと最小二乗近似による直線との誤差が最小になるように  $M(P)/M(O)$  を定めた。

ところで、4.2節で述べたように、本研究におけるREMPIスペクトル線強度は入射光強度のほぼ2乗に比例する。REMPIの手法を用いて正確に温度計測を行うためには、同時に測定した入射光強度を用いて適切な規格化を行い、入射光強度のゆらぎによる影響を除去する必要がある。本研究で測定したREMPIスペクトル線強度を入射光強度で規格化する最適な方法を求めるため、入射光強度の1.7, 1.8, 1.9, 2.0乗で規格化した信号光を用いてボルツマンプロットを行い、それぞれの場合において最適な  $M(P)/M(O)$  を求め、その時の最小二乗近似の誤差を検証した。その結果、信号強度を入射光の1.7乗で規格化し

た場合における,  $M(P)/M(O) = 0.806$  が最適値であることが確認された. 図 10 は,  $M(P)/M(O) = 0.806$  を用い, O(5), O(10), O(11), O(12), P(7), P(12), P(13), P(14) のスペクトル線を利用してボルツマンプロットを行った結果である. これより, 測定点における回転温度は 247K と求められた.

上述の規格化の手法および求められた  $M(P)/M(O)$  の最適値の妥当性を検証するため,  $M(P)/M(O) = 0.806$  および求められた回転温度  $T_{rot} = 247K$  を利用し, 式 (1) を用いて REMPI スペクトルのシミュレーションを行い, 実験結果と比較した (図 4). この図より, シミュレーション結果が実験結果と良く一致していることがわかる. これより, 本研究で測定した信号強度を入射光強度の 1.7 乗で規格化する方法および  $M(P)/M(O) = 0.806$  として行った REMPI スペクトルのシミュレーション手法の妥当性が示された. また同時に, このシミュレーション結果を用いたスペクトルフィッティングによる温度計測法の可能性も示された.

REMPI スペクトル解析により求められた回転温度の妥当性を検証するため, Gallagher と Fenn によって導かれた緩和方程式<sup>(10)</sup> を解くことにより, REMPI の測定点 ( $x/D = 10$ ) における回転温度を求めた. なお, 回転衝突数  $Z_r$  は 4.2<sup>(11)</sup> とし, 超音速流の中心線上におけるマッハ数分布は Ashkenas と Sherman による経験式<sup>(12)</sup> を適用して求めた. ノズル出口付近の遷音速領域におけるマッハ数分布は Sherman らによる実験結果<sup>(12)</sup> を 8 次の多項式で近似したものを利用した. この計算の結果,  $x/D = 10$  において  $T_{rot} = 235K$  となり, 実験結果よりやや低い値がほぼ近い値が求められた. 一般的に,  $Z_r$  の値はよどみ点温度および圧力などの実験条件により大きく変化する<sup>(13)</sup>. 本研究で行った実験条件に適する  $Z_r$  は 4.2 よりやや高くなることが予想されるが, 正確な  $Z_r$  を求めるためには, さらなる実験を行い,  $x/D$  に対する回転温度の依存性を解析する必要がある.

## 5 結言

本研究では, 窒素を対象とした 2R+2 REMPI による超希薄気体流計測法を確立するため, REMPI 信号測定のための実験系を構成し, 超音速自由噴流の中心線上における REMPI スペクトルの測定を行った. これにより得られた結果を以下に示す.

- (1) 本研究で構成した実験系において, REMPI 信号強度は入射光強度の約 1.7 乗に比例することが確認された. これより, 本計測システムのレーザー強度では共鳴準位へ励起された分子のほぼ全てがイオン化されるため, REMPI スペクトルが基底準位の回転エネルギー

分布を反映していることが示された.

- (2) REMPI 信号強度が窒素の数密度にほぼ比例していることを確認した. また, 本実験系において, 温度計測が可能な数密度限界がほぼ  $4.0 \times 10^{12}/\text{cm}^3$  であることを確認した. なお, 入射光強度を増加させたり, 検出器のゲインを増加させることのほかに, 検出部の真空度を上げることにより, 検出感度はさらに向上するものと思われる.
- (3) O 枝または P 枝に属するスペクトル線を用いて REMPI 信号の計測点における回転温度を求めた. その結果, 貯気室内温度および圧力がそれぞれ 294K, 0.60Torr のとき,  $x/D = 10$  において, 回転温度がそれぞれ 246K および 248K となった. これより, O 枝と P 枝のどちらを用いた場合においても, ほぼ同じ回転温度の値が求められることが確認された.
- (4) ブランチの異なるスペクトル線を利用したボルツマンプロットを可能にするため, ヘンル・ロンドン因子の  $M(P)$  と  $M(O)$  の比を実験によって求め,  $M(P)/M(O) = 0.806$  を得た. これを利用して, O 枝と P 枝のスペクトル線強度を用いたボルツマンプロットを行い, 回転温度 247K を得た. この回転温度と  $M(P)/M(O) = 0.806$  の値を用いて REMPI スペクトルのシミュレーションを行った結果, 実験スペクトルとよく一致した結果が得られた. これにより, 複数のブランチに属するスペクトル線を用いたボルツマンプロットの手法の有効性が明らかとなり, 同時にスペクトルフィッティングによる温度計測法の可能性も示された.

なお, 本研究は文部省科学研究費補助金 [基盤研究 (B)] および科学技術庁科学技術振興調整費「機能性分子による熱流体センシング技術の研究開発 (MOSAIC)」の援助を受けたことを付記し謝意を表す.

## 文献

- (1) C. Dankert, R. Cattolica and W. Sellers, *Local Measurement of Temperatures and Concentrations: A review for Hypersonic Flows*, New Trends in Instrumentation for Hypersonic Research(1994), 563–581.
- (2) T. Niimi, T. Fujimoto and N. Shimizu, *Method for Planar Measurement of Temperature in Compressible Flow Using Two-line Laser-Induced Iodine Fluorescence*, Opt. Lett., Vol.15–16 (1990), 918–920.
- (3) Y. Hara, T. Fujimoto, T. Niimi, Y. Fukuda and H. Oba, *Measurement of Temperature and Number Density by CARS: Application to Plasma Jets*, Rarefied

- Gas Dynamics: Space Science and Engineering, AIAA, Vol.160 (1992), 360–370.
- (4) K. L. Carleton, K. H. Welge and S. R. Leone, *Detection of Nitrogen Rotational Distributions by Resonant 2+2 Multiphoton Ionization through the  $a^1\Pi_g$  State*, Chem. Phys. Lett., Vol.115, No.6 (1985), 492–495.
- (5) K. R. Lykke and B. D. Kay, *Two-photon spectroscopy of  $N_2$ : Multiphoton ionization, laser-induced fluorescence, and direct absorption via the  $a''^1\Sigma_g^+$  state*, J. Chem. Phys., Vol.95, No.4 (1991), 2252–2258.
- (6) 森英男, 石田敏彦, 林繁幸, 青木義典, 新美智秀, REMPIによる超希薄気体流計測に関する研究 (REMPI スペクトルのシミュレーションとその基本特性), 機論, Vol.65, No.637, B(1999), 3035–3041.
- (7) A. E. Bruno, U. Schubert, H. J. Neusser and E. W. Schlag, *Resonantly Enhanced 2+2 Multiphoton Ionization Spectra of  $N_2$  via the  $\bar{a}^1\Pi_g$  State: A Line Intensity Study*, Chem. Phys. Lett., Vol.131, No.1–2 (1986), 31–36.
- (8) R. G. Bray and R. M. Hochstrasser, *Two-Photon Absorption by Rotating Diatomic Molecules*, Mol. Phys., Vol.31, No.4 (1976), 1199–1211.
- (9) J. B. Halpern, H. Zacharias and R. Wallenstein, *Rotational Line Strengths in Two- and Three-Photon Transitions in Diatomic Molecules*, J. Mol. Spectrosc., Vol.79 (1980), 1–30.
- (10) R. J. Gallagher and J. B. Fenn, *Relaxation rates from time of flight analysis of molecular beams*, J. Chem. Phys., Vol.60, No.9 (1974), 3487–3491.
- (11) D. R. Miller and R. P. Andres, *Rotational Relaxation of Molecular Nitrogen*, J. Chem. Phys., Vol.46, No.9 (1967), 3418–3423.
- (12) H. Ashkenas and F. S. Sherman, *The Structure and Utilization of Supersonic Free Jets in Low Density Wind Tunnels*, Proceedings of 4th International Symposium on Rarefied Gas Dynamics, Vol.2(1966), 84–105.
- (13) B. K. Nazari, A. E. Beylich, C. Dankert, *Rotational Temperature Measurements in the New DLR-High Vacuum Test Facility STG by Means of REMPI*, Proceedings of 21st International Symposium on Rarefied Gas Dynamics (to be published).