

CO₂ レーザーバンドの吸収線強度と半値半幅

Line strengths and half-widths of the laser bands of CO₂

深堀正志¹, 青木忠生^{1,2}, 藤枝鋼¹, 横田達也², 中島英彰², 笹野泰弘², 渡邊猛³

1:気象研究所, 2:国立環境研究所, 3:東レリサーチセンター

Masashi FUKABORI¹, Tadao AOKI^{1,2}, Tsuyoshi FUJIEDA¹, Tatsuya YOKOTA², Hideaki NAKAJIMA²,
Yasuhiro SASANO², and Takeshi WATANABE³

1:Meteorological Research Institute, 2:National Institute for Environmental Studies, 3:Toray Research Center, Inc.

Abstract

The line strengths, self-, N₂-, and O₂-broadened half-widths of the CO₂ laser bands were determined from spectra measured with a high-resolution Fourier transform spectrometer at room temperature. The square of the transition dipole moment and the coefficients of the Herman-Wallis factor were also determined for the CO₂ laser bands. The results obtained were compared with the compiled values in the HITRAN database and available values previously reported in the literature.

1. はじめに

10 μ m 付近には CO₂ による平行振動帯のホットバンド[レーザーバンド I (吸収帯中心 10.4 μ m, 960.959 cm⁻¹), (00011-10001) 帯; レーザーバンド II (吸収帯中心 9.4 μ m, 1063.735 cm⁻¹), (00011-10002) 帯]が存在する。これらの CO₂ レーザーバンドの吸収帯強度は比較的弱いものの, ライダーや気温の鉛直分布の遠隔測定には重要である。10 μ m 付近の大気の透過率計算には, CO₂ レーザーバンドの正確な線強度や線幅などのパラメータが必要である。しかし, これらのパラメータの精度は充分とはいえないのが現状である。実際に, Dana et al.(1992), Johns and Noël(1992)や Malathy Devi et al.(2003)により報告された高分解能実験の結果は異なり, Johns and Noël(1992)の線強度は他者のそれに比較して, 4-5% 大きい傾向を示している。最近の HITRAN データベースには Dana et al.の値が採用されている。このために HITRAN データベースの妥当性を検証する目的で実験を行った。

2. 実験・解析

高分解能フーリエ変換型赤外分光計 (Bruker IFS-120 HR) を用いて吸収スペクトルを測定した。本研究では, 分光計の波数分解能を 0.0065 cm⁻¹ と 0.01 cm⁻¹ に設定した。CO₂ のみの実験 (Self-broadening), CO₂ と N₂ の混合気体の実験 (N₂-broadening) CO₂ と O₂ の混合気体の実験 (O₂-broadening) の3種類を行った。用いた吸収セル (鏡間距離約 80 cm の多重反射セル) の光路長を, 658.4 cm (Self-broadening) と 2598 cm (N₂-と O₂-broadening) に設定した。試料気体の

温度は 299 \pm 1 K であり, 測定誤差は吸収セル内部の温度差や測定中の温度変化に起因する。また圧力測定には, MKS Baratron 圧力計 (622: 1000 torr レンジ) を用いた。吸収線パラメータの導出には非線形最小 2 乗法を用いて行い, 線強度と半値半幅を同時に求めた。Fig.1 に, 測定スペクトルとフィッティングスペクトル及びその残差の一例を示す。また線強度から, 遷移双極子モーメント及び Herman-Wallis 因子について解析した。

3. 結果

Fig.2 に, レーザーバンド I の遷移双極子モーメントの 2 乗と m 数の関係を示す。横軸の m 数は, 振動回転遷移に関わる下位準位の回転量子数を J' とすると, m=J'+1 (R 枝), m=J' (P 枝) である。図中の本研究による遷移双極子モーメントの 2 乗 (白丸) は, HITRAN データベースの値 (実線: 296 K) と比較するために 299 K から 296 K の値に変換されている。本研究の値は R 枝の広い領域で HITRAN2K の値と実験誤差の範囲内で良く一致していたが, m 数が 20 より小さな P 枝の吸収線に対しては, 本研究の値は HITRAN2K の値よりも小さい傾向にあった。本研究の振動遷移双極子モーメントの 2 乗 (m=0 における遷移双極子モーメントの 2 乗) は, Dana et al.(1992) 及び Malathy Devi et al.(2003) のそれと 1-2% 以内で一致することが確認できた。Fig.3 は, レーザーバンド II における遷移双極子モーメントの 2 乗と m 数の関係である。本研究による遷移双極子モーメントの 2 乗は, m 数が 20 より大きな R 枝の吸収線に対して, HITRAN2K よりも小さくなる傾向を示した。こ

のことは Herman-Wallis 因子の m 数に関する 2 次の係数が両者で異なることを意味しており、今後さらに検討が必要である。レーザーバンド II に対する振動遷移双極子モーメントの 2 乗は、レーザーバンド I と同様に、Dana et al.(1992)及び Malathy Devi et al.(2003)のそれと 1-2% 以内で一致することが分かった。

本研究による半値半幅の値と Dana et al.(1992)の結果との比較を、レーザーバンド I と II に対して、Fig.4 と Fig.5 に示す。両吸収帯で、半値半幅の値の差異は見られなかった。Self-, N_2 - 及び O_2 -broadening の半値半幅は Dana et al.(1992)の値や近年報告されている高分解能実験の結果と良く一致するものであった。

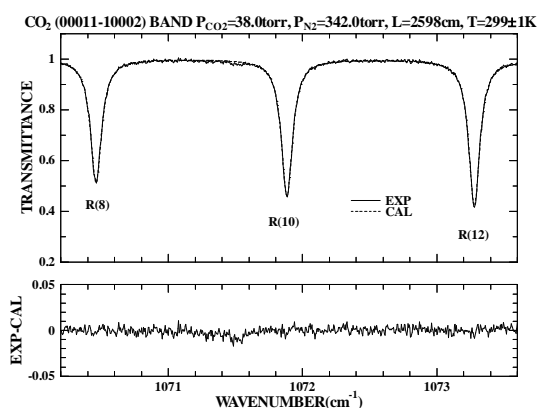


Fig.1 Comparison of the measured and calculated spectra of the R(8)-R(12) lines in the (00012-10001) band of CO_2 . The solid line in the upper panel indicates the experimental spectrum and the broken line represents the calculated spectrum with the proper line parameters. The lower panel presents the residuals of the measured and calculated spectra.

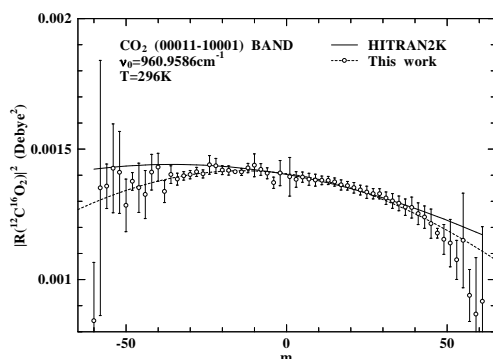


Fig.2 Variation of the squared transition dipole moment with the rotational quantum number for the (00011-10001) band of CO_2 . The solid line represents the HITRAN2K values. Open circles indicate the squared transition dipole moments measured in this study.

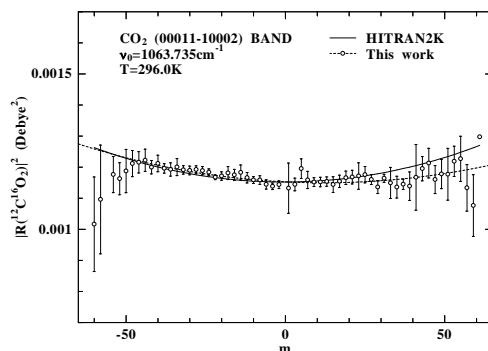


Fig.3 Variation of the squared transition dipole moment with the rotational quantum number for the (00011-10002) band of CO_2 . The solid line represents the HITRAN2K values. Open circles indicate the squared transition dipole moments measured in this study.

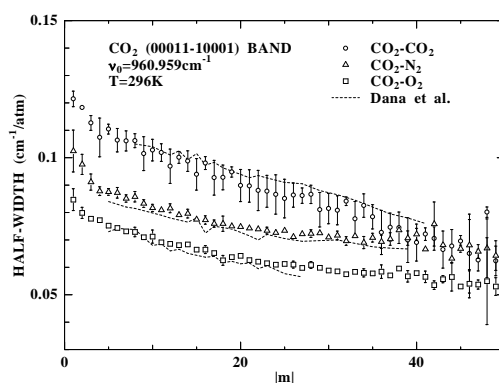


Fig.4 Self-, N_2 -, and O_2 -broadened half-widths of the (00011-10001) band of CO_2 . Open circles, triangles, and squares represent the measured self-, N_2 -, and O_2 -broadened half-widths of the R- and P-branch lines in the (00011-10001) band of CO_2 . The broken lines indicate the results of Dana et al.

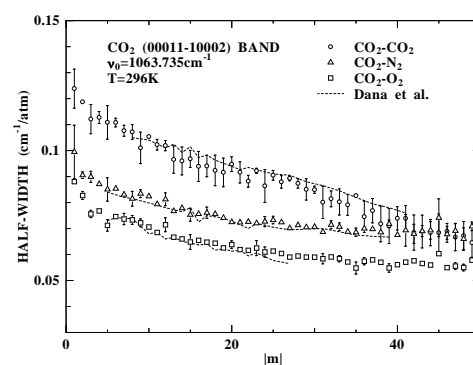


Fig.5 Self-, N_2 -, and O_2 -broadened half-widths of the (00011-10002) band of CO_2 . Open circles, triangles, and squares represent the measured self-, N_2 -, and O_2 -broadened half-widths of the R- and P-branch lines in the (00011-10002) band of CO_2 . The broken lines indicate the results of Dana et al.