Detection of Metastable Excited Molecules $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ in an Atmospheric Pressure Nitrogen Discharge using Raman Scattering

Tetsuo Fukuchi Member (Central Research Institute of Electric Power Industry)

Keywords : metastable excited molecule, Raman scattering, nitrogen discharge, impulse discharge

Metastable molecules in a nitrogen discharge are known to play important roles in the progression of discharges and influence the insulation characteristics of nitrogen gas. The lowest lying triplet level $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ is one of the important metastable levels because it is readily populated by cascading from upper triplet levels $N_2(B^3\Pi_g)$ and $N_2(C^3\Pi_u)$. So far, optical measurement of $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ in nitrogen discharges by laser absorption spectroscopy, laser-induced fluorescence, intracavity laser spectroscopy have been reported, but only for pressure range $P < 1$ kPa. This study examines the possibility of applying laser Raman scattering to detect $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ in nitrogen discharges at atmospheric pressure.

The experimental arrangement is shown schematically in Fig. 1. A lightning impulse voltage of negative polarity was applied to a needle-needle gap of length 10-15 mm in a discharge chamber filled with nitrogen gas, creating a spark discharge. Laser pulses from a Nd:YAG laser (wavelength 266 nm, repetition rate 10 Hz, maximum pulse energy 30 mJ) were directed through the gap, and Raman scattering from $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ at wavelength 277 nm was detected using a photomultiplier (PMT). The scattered laser light at wavelength 266 nm and Raman scattering from ground level $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ molecules at wavelength 284 nm were rejected by a narrowband interference filter (center wavelength 277 nm, FWHM 1.5 nm). The laser signal was monitored by a photodiode (PD). The PD and PMT signals were measured by a digital oscilloscope. The impulse voltage generator was triggered by a second laser at a repetition rate of 0.2 Hz, in order to provide synchronization between the discharge and the Nd:YAG laser. Raman scattering measurements were performed at time delays of $\Delta t > 70$ μ s relative to the spark discharge.

Figure 2 shows an example of the Raman scattering signal obtained in the case of a spark discharge, and the noise signal obtained with no discharge. Figure 3 shows the dependence of the

Raman scattering signal intensity on Δt . Assuming a simple exponential dependence, the relaxation time was found to be 200 μ s.

The lifetime of $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ molecules due to collisional deexcitation by ground level $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ molecules was estimated to be 130 μ s. This is of the same order as the observed relaxation time 200 μ s. The effect of photo-ionization of $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ by laser irradiation has not been considered in the analysis.

In addition, by scanning the laser irradiation position in the direction perpendicular to the gap, the Raman scattering signal was confirmed to appear only when the laser was irradiated on the discharge region.

Fig. 2. Example of Raman scattering signal obtained with discharge and noise signal obtained with no discharge

Fig. 3. Dependence of Raman scattering signal intensity on the delay time of the laser relative to the discharge; the dotted line shows an exponential fit

Fig. 1. Schematic diagram of the experimental apparatus

ラマン散乱法による大気圧窒素放電中の 準安定励起分子 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の検出

正 員 福地 哲生*

Detection of Metastable Excited Molecules $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ in an Atmospheric Pressure Nitrogen Discharge using Raman Scattering

Tetsuo Fukuchi*, Member

Raman scattering from metastable excited nitrogen molecules $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ created by an impulse discharge in nitrogen at atmospheric pressure was detected. A pulsed Nd:YAG laser of wavelength 266 nm was used as the light source, and Raman scattering from $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ at wavelength 277 nm was detected using an interference filter and photomultiplier tube. The filter had sufficient rejection of Rayleigh scattering of laser light at wavelength 266 nm and Raman scattering from ground state nitrogen molecules $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ at wavelength 284 nm. The temporal variation of the signal intensity of Raman scattering from $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ was measured by transmitting the laser at different time delays relative to sparkover. Results showed that the signal intensity decayed with a time constant of about 200 μ s.

キーワード：準安定励起分子，ラマン散乱法，窒素中放電，インパルス放電

Keywords : metastable excited molecule, Raman scattering, nitrogen discharge, impulse discharge

1. 序 論

窒素ガス (N_2) は、放電を発生させる際の雰囲気ガスとして古くから用いられてきた。近年においては、 SF_6 代替ガスとしての絶縁媒体、窒化物生成における大気圧プラズマプロセスの雰囲気ガスなどに応用されている。しかし、これまでに行われてきた N_2 中の放電進展に関する研究は低圧領域におけるものが殆どである。Haydon らによる検討^{(1)~(6)}によれば、準安定励起分子 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ が陰極近傍における二次電離過程において支配的である⁽²⁾⁽⁴⁾。準安定励起分子は絶縁破壊へ至る放電進展において大きな役割を果たす可能性があるため、大気圧および高圧 N_2 の絶縁特性の把握には準安定励起分子の挙動を把握する必要がある。しかしながら、大気圧又は高圧 N_2 中における準安定励起分子計測に関する報告は殆どない。これは、低圧領域において用いられている計測手法が大気圧以上の領域においては適用困難であるためである。

高圧 N_2 中においては雷インパルス電圧印加時に絶縁破壊までの時間が著しく長くなることが報告されている⁽⁷⁾。この傾向は負極性の場合に顕著で、形成時間によるものと推定

されるが、その理由は明らかになっていない。準安定励起分子 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ は電子衝突励起によって生成され易く、電子エネルギーを内部エネルギーに変換して貯蔵する媒体として作用することから⁽⁸⁾、長い形成時間に寄与する可能性がある。

本研究では、大気圧以上においても分子種毎の検出が可能なラマン散乱法について、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の検出への適用の可能性を評価するために、窒素中におけるインパルス放電によって生成された $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の検出実験を行った。

2. $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の計測法に関する検討

〈2・1〉 N_2 の特性 N_2 に関する分光研究は古くから行われてきており、各励起準位のエネルギー、各々の準位の原子核間距離などの分子定数、準位間の放射遷移およびその波長などはほぼ確定している⁽⁹⁾。主な電子準位および窒素放電で観測される主な放射遷移を示した N_2 のエネルギー準位図を図 1 に示す。なお、図 1 では電子準位のみを示したが、各々の電子準位には多数の振動準位が、各々の振動準位には多数の回転準位が存在する。

N_2 中における放電によって電子が生成されると、電子衝突励起によって多数の励起分子が生成される。上位の準位に励起された $N_2(C^3\Pi_u)$ は発光を伴い $N_2(B^3\Pi_g)$ へ緩和し、 $N_2(B^3\Pi_g)$ は発光を伴い $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ へ緩和する。 $N_2(C^3\Pi_u)$ の放射寿命は 37ns, $N_2(B^3\Pi_g)$ の放射寿命は 8 μ s である⁽⁹⁾。しかし、

* (財) 電力中央研究所 電力技術研究所
〒240-0196 横須賀市長坂 2-6-1
Electric Power Engineering Research Laboratory,
Central Research Institute of Electric Power Industry
2-6-1, Nagasaka, Yokosuka 240-0196

図1 主要な電子励起準位と放射遷移を示した
N₂のエネルギー準位図

Fig. 1. Energy level diagram of N₂ showing principal electronically excited levels and radiative transitions.

N₂(A³Σ_u⁺)から N₂(X¹Σ_g⁺)への放射遷移はスピン選択則によって禁制されるため、N₂(A³Σ_u⁺)の放射寿命は 1.9s と非常に長く⁽⁹⁾、故に準安定励起準位となる。

〈2・2〉 N₂(A³Σ_u⁺)の計測例 これまでに報告されている N₂(A³Σ_u⁺)の計測例として、吸収分光法⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾、レーザ吸収分光法⁽¹²⁾、レーザ共振器内吸収分光法⁽⁸⁾⁽¹³⁾、レーザ誘起蛍光法⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾を用いたものがある。しかし、これらの報告はいずれも P<1kPa の低圧領域に限られている。

また、発光分光法計測と励起分子・原子・イオンの生成・消滅過程のモデリングを組み合わせる N₂(A³Σ_u⁺)の密度を求めた例もある⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾。発光データを用いない純粋な計算に基づくモデリングも行われているが^{(18)~(20)}、プラズマプロセスなどに用いられることの多い低圧領域が中心となっている。大気圧放電に関するものでは熱流体的モデルが報告されているが⁽²¹⁾、励起準位の影響を考慮するなど、分子レベルでの考察はなされていない。

上記の他に、低仕事関数の検出器による準安定分子の検出が報告されている⁽²²⁾。また、定量化された微量の NO を混合し、N₂(A³Σ_u⁺)と NO の衝突に伴うエネルギー移行と NO の発光を利用する計測法も報告されている⁽²³⁾⁽²⁴⁾。

〈2・3〉 ラマン散乱法の適用 低圧領域から大気圧以上の領域において適用可能な分子種の計測法としてラマン散乱法がある。ラマン散乱は大気圧下では大気中成分の遠隔計測に⁽²⁵⁾、低圧領域ではプラズマ計測に適用されている⁽²⁶⁾。しかし、現時点においてはラマン散乱法を用いた N₂(A³Σ_u⁺)計測は報告されていない。

ラマン散乱は散乱光のエネルギーが入射レーザ光のエネルギーに対して測定対象分子種の振動エネルギー分だけ減少する現象である。よって、散乱光の波長は入射光の波長に対して長波長側にシフトする。シフト量 Δν は散乱分子の振動定数によって決まり、波長の逆数となる波数 (単位: cm⁻¹) で表される。入射光の波長 λ に対するラマン散乱光の波長 λ_r は (1) 式によって与えられる。

図2 ラマン散乱のエネルギー準位図

Fig. 2. Energy level diagram of Raman scattering.

$$\lambda_r = (1/\lambda - \Delta\nu)^{-1} \dots\dots\dots (1)$$

また、ラマン散乱光の発生効率を決定するラマン散乱断面積 σ_R は λ⁻⁴ に比例するため、レーザ波長が短いほど測定感度が向上する。よって、ラマン散乱用のレーザ光源として Nd:YAG レーザの第 4 高調波 (λ=266nm) 又は第 3 高調波 (λ=355nm)、エキシマレーザ (λ=248, 308nm) などが考えられる。本研究ではレーザ装置の扱い易さの観点から Nd:YAG レーザの第 4 高調波を用いた。

N₂(A³Σ_u⁺)からのラマン散乱光を選択的に検出する場合、主たる外乱要因はレーザの反射光とレイリー散乱光、および N₂(X¹Σ_g⁺)からのラマン散乱光である。本研究では窒素中放電を対象としているため、大気中放電では外乱要因となり得る O₂ からのラマン散乱光は考慮しない。

基底準位 N₂(X¹Σ_g⁺)および準安定励起準位 N₂(A³Σ_u⁺)からのラマン散乱のエネルギー準位図を図 2 に模式的に示す。ここではラマン散乱の起源となる振動エネルギーのみを考慮し、図 1 に示した N₂(A³Σ_u⁺)の電子エネルギー (約 6eV) は図 2 には含めていない。N₂(X¹Σ_g⁺)の振動エネルギーは 2330cm⁻¹、N₂(A³Σ_u⁺)の振動エネルギーは 1433cm⁻¹ であるため、λ=266nm のレーザを用いた場合のラマン散乱波長は N₂(X¹Σ_g⁺)の場合 λ_r=284nm、N₂(A³Σ_u⁺)の場合 λ_r=277nm となる。紫外域においては半値全幅 2nm 以下の狭帯域の干渉フィルタが市販されており、これを用いれば N₂(A³Σ_u⁺)からのラマン散乱光を選択的に検出できると考えられる。

波長 266nm のレーザ光に相当する光子のエネルギーは 4.6eV である。N₂ の解離エネルギーは 9.76eV、電離ポテンシャルは 15.6eV であるため⁽²⁷⁾、多光子吸収が起こらない程度のレーザ光強度ではレーザ照射による解離や電離などの擾乱は発生しないと考えられる。一方、レーザ照射により N₂(A³Σ_u⁺)からの光電離が生ずる可能性はあるが、N₂(A³Σ_u⁺)の光電離断面積が不明であるためここでは考慮していない。

3. 実験装置

窒素中インパルス放電によって生成された N₂(A³Σ_u⁺)から

のラマン散乱光を検出するための実験装置を構築した。ラマン散乱用光源として Nd:YAG レーザ (Big Sky Laser 社製 CFR400, 波長 266nm, パルス幅 10ns, 最大パルスエネルギー 30mJ, くり返し 10Hz, 以下 laser 1) を用いた。本レーザはフラッシュランプで Nd:YAG 結晶を励起し, 200 μ s 後に Q スイッチを動作させてパルスを出射した。

放電と laser 1 を同期させるために, インパルス電圧発生器 (パルス電子技術社製 IVG-200A) のスパークギャップ (球-球ギャップ, ギャップ長 10mm) を自爆電圧の 90~95% まで充電し, laser 1 と同期した別のレーザを負極側の球に集光してプラズマを発生させ, スパークギャップを短絡させて雷インパルス電圧 (波頭長 1 μ s, 波尾長 50 μ s) の発生時を制御した。ここで用いたトリガ用レーザはダイオード励起 Nd:YAG レーザ (Thales Laser 社製 DIVA2, 波長 1064nm, パルス幅 10ns, パルスエネルギー <10mJ, くり返し 20Hz, 以下 laser 2) であった。本レーザはダイオードで Nd:YAG 結晶を励起し, 130 μ s 後に Q スイッチを動作させてパルスを出射する。

2 台のレーザの動作法を図 3 に示す。laser 2 のダイオードは内部トリガで動作させ, その同期信号で時間遅延発生器をトリガした。時間遅延発生器は 2 回のトリガ入力に対して 1 回の割合で信号を出力するように設定し, この 10Hz の信号で laser 1 のフラッシュランプ (FL) をトリガした。インパルス電圧発生器を充電させるためには約 4 秒間要したため, 放電は 5 秒に 1 回 (0.2Hz) で発生させた。このため, 前述の時間遅延発生器の出力信号で二台目の時間遅延発生器をトリガし, 後者は 50 回のトリガ入力に対して 1 回の割合で信号を出力するように設定し, この 0.2Hz の信号で laser 1 と laser 2 の Q スイッチ (Q-SW) を動作させた。

実験で用いた laser 1 のフラッシュランプ, laser 2 のダイオード, および双方の Q スイッチの動作タイミングを図 4 に示す。負極性インパルス電圧の波高値 (約 90kV) は針-針ギャップの絶縁破壊電圧に対して十分高く, laser 2 の Q スイッチ印加後 1 μ s 以内に火花放電が発生した。ラマン散乱計測は laser 1 の Q スイッチ印加時に行った。双方のレーザの Q スイッチの動作時間の違いから, 本実験では放電発生後 70 μ s 以降においてラマン散乱計測を行った。

インパルス電圧発生器を除いた実験装置の配置図を図 5

に示す。直径 50cm の放電容器の中心部にギャップ長 10~15mm の針-針ギャップを設置し, 容器を N₂ で気圧 0.1MPa に満たした。laser 1 の出力光をギャップ領域を通過させ, N₂(A³ Σ_u^+)からのラマン散乱光は焦点距離 300mm の石英平凸レンズで集光し, 中心波長 277nm, 半値全幅 1.5nm の干渉フィルタを介して光電子増倍管 (PMT) で検出した。放電容器の構造上, ラマン散乱光はレーザ光の通過方向に対して 45 度の方向から検出した。レーザ光の波形は放電容器の下流側に設置したフォトダイオード (PD) によって検出し, PD 波形と PMT 波形はショット毎にデジタルオシロスコープで測定し, 記録した。また, 針-針ギャップに対する laser 1 の光の入射位置を変えられるように, 放電容器への入出力鏡を可動ステージ上に設置し, laser 1 のビームがギャップに対して垂直な方向に走査できるようにした。

ギャップへの印加電圧と放電電流はそれぞれ分圧器とログスキーコイルを用いて測定した。負極性インパルス電圧を印加した際の電圧波形および電流波形を図 6 に示す。ここでは過電圧を印加しているため約 -40kV で波頭破壊が起こっている。また, 破壊後の電流波形はインパルス発生器の抵抗とインダクタンスによって決まり, 破壊後約 30 μ s で

図 4 実験のタイミング

Fig. 4. Experimental timing diagram.

図 3 レーザの動作法

Fig. 3. Operation method of lasers.

図 5 実験装置の配置図

Fig. 5. Schematic diagram of experiment.

図6 放電の電圧波形および電流波形

Fig. 6. Voltage and current waveforms of discharge.

ほぼ0に減衰している。

4. 実験結果

〈4・1〉 ラマン散乱信号の検出 インパルス電圧を印加した場合（放電あり）および印加しなかった場合（放電なし）に得られたラマン散乱信号の測定結果を図7に示す。放電なしの場合、信号が見られなかったことからレーザーの反射光とレイリー散乱光、 $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ からのラマン散乱光は十分除去できたことが分かる。放電ありの場合、十分に有意なラマン散乱信号が得られた。

〈4・2〉 ラマン散乱信号強度の時間変化 次に、放電後における $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ からのラマン散乱信号強度の時間変化を調べるために、laser1を入射する時間をインパルス電圧印加時に対して遅延させて測定を行った。得られた波形を図8に示す。図8では各波形を分離するために10mVずつ上方にずらして表示した。レーザー照射前のPMT信号レベルに対する各波形のピーク値として算出したラマン散乱信号強度の時間依存性を図9に示す。図中の各点およびエラーバーは連続5回の測定結果の平均値および標準偏差である。絶縁破壊後70~370μsにおいて散乱信号強度は約200μsの時定数で減衰した。散乱信号強度が $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ 密度に比例すると仮定すると、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の寿命は約200μsとなった。

上記で求めた寿命が衝突緩和による寿命と比べて妥当であるかを検討した。 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ が $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ との衝突によって緩和し、消滅すると仮定すると、レート方程式は(2)式となる。ここで $\kappa=3\times 10^{-16}\text{cm}^3\text{s}^{-1}$ は $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ と $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ の反応定数である⁽²⁸⁾。

$$-\frac{d[N_2(A)]}{dt} = \kappa[N_2(A)][N_2(X)] \quad (2)$$

$[N_2(A)]$ が指数関数的に減少すると仮定すると、寿命は(3)式で与えられる。

$$\tau = \frac{1}{\kappa[N_2(X)]} \quad (3)$$

放電容器の窒素充填圧力 0.1MPa に相当する気体密度

図7 ラマン散乱信号の例

Fig. 7. Example of Raman scattering signal.

図8 異なる遅延時間におけるラマン散乱信号

Fig. 8. Raman scattering signal at different delay times.

図9 ラマン散乱信号強度の時間依存性

Fig. 9. Time dependence of the Raman scattering signal intensity.

$[N_2(X)]=2.5\times 10^{19}\text{cm}^{-3}$ と $\kappa=3\times 10^{-16}\text{cm}^3\text{s}^{-1}$ を(3)式代入した場合、 $\tau=130\mu\text{s}$ が得られる。

一方、実験から得られた実効寿命は $\tau=200\mu\text{s}$ であり、これから気体密度を逆算すると $[N_2(X)]=1.7\times 10^{19}\text{cm}^{-3}$ となる。放

図 10 ラマン散乱信号強度のレーザー照射位置依存性（ビーム径は右上に表示）

Fig. 10. Dependence of Raman scattering signal intensity on laser irradiation position (the beam size is shown on the upper right).

電領域では電気エネルギーの熱への変換によって雰囲気ガスが加熱され希薄化が起こるため、気体密度が放電前と比較して低下していることは妥当であると考えられる。

また、〈2・3〉節で述べた通り、ここではレーザー照射による $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の光電離の影響を考慮していないため、上記のレート方程式との比較および寿命の評価は光電離が無いという仮定に基づくものである。

〈4・3〉 レーザ照射位置依存性 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ からのラマン散乱信号が放電領域からのみ発生していることを確認するために、レーザー照射位置をギャップ方向と垂直な方向に走査して測定を行った。レーザー光のビーム径は 5mm であったため、走査間隔は 5mm とした。測定結果を図 10 に示す。図 10 から、ラマン散乱信号はレーザー照射位置が $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ が存在し得る放電近傍にある場合のみ発生することを確認した。

なお、本測定はレーザー照射位置の走査方向における $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の分布の測定を意図したものではない。 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の空間分布の測定は今後の課題である。

5. 結 論

大気圧窒素中放電において、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ からのラマン散乱光を検出する実験を行い、以下を示した。

(1) 狭帯域の干渉フィルタを用いることでレーザーの迷光、レイリー散乱光、基底準位 $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ からのラマン散乱光を除去し、ノイズに対し有意な $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ からのラマン散乱信号を得た。これにより、ラマン散乱法を用いて $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ が検出可能であることを示した。

(2) 絶縁破壊に対してラマン散乱用レーザーの入射時を変えて測定を行った結果、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ からのラマン散乱信号強度は約 200 μ s の時定数で減衰した。この時定数は $N_2(A^3\Sigma_u^+)$

の $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ との衝突緩和時間に考慮した場合、妥当な値であった。

(3) レーザの照射位置をギャップと垂直な方向に走査した結果、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ からのラマン散乱信号は火花放電近傍からのみ発生することを確認した。

ラマン散乱法を用いた $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の空間分布の測定、高圧窒素中 (0.1~2.0MPa) 放電における測定は今後の課題である。また、本実験においては絶縁破壊後における $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の検出を行ったが、形成時間に対する $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の寄与を明らかにするためには絶縁破壊に至る過程において測定を行う必要がある。

現時点において $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ のラマン散乱断面積（絶対値あるいは $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ のラマン散乱断面積に対する相対値）は求められていないため、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ の密度を求めるには至らない。 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ 密度の定量化は今後の課題である。

(平成 19 年 6 月 26 日受付, 平成 20 年 1 月 16 日再受付)

文 献

- (1) M. A. Folkard and S. C. Haydon : "Experimental investigations of ionization growth in nitrogen: I", *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, Vol.6, pp.214-226 (1973)
- (2) S. C. Haydon and O. M. Williams : "Experimental investigations of ionization growth in nitrogen: II", *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, Vol.6, pp.227-231 (1973)
- (3) S. C. Haydon and O. M. Williams : "Secondary ionization by metastable particles in nitrogen", *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, Vol.6, pp.1866-1880 (1973)
- (4) S. C. Haydon and O. M. Williams : "Combined spatial and temporal studies of ionization growth in nitrogen", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.9, pp.523-536 (1976)
- (5) S. C. Haydon, M. P. Fewell, A. D. Ernest, and M. J. Baldwin : "Diffusion coefficients of two metastable states of the nitrogen molecule", *Chem. Phys.*, Vol.206, pp.245-256 (1996)
- (6) M. P. Fewell, S. C. Haydon, and A. D. Ernest : "Identification of slowly diffusing metastable states of the nitrogen molecule", *Chem. Phys.*, Vol.206, pp.257-267 (1996)
- (7) H. Goshima, H. Shinkai, and M. Yashima : "Lightning Impulse Breakdown Characteristics of High-Pressure Nitrogen Gas under Quasi-Uniform Field Gap and under Non-Uniform Field Gap with Presence of a Metallic Particle", *T. IEE Japan*, Vol.121-B, No.4, pp.467-474 (2001-4) (in Japanese)
- (8) 五島久司・新開裕行・八島正史 : 「高圧窒素ガスの準平等電界ギャップおよび金属異物存在条件下での雷インパルス絶縁特性」, 電学論 B, **121**, 4, pp.467-474 (2001-4)
- (9) C. Foissac, A. Campargue, A. Kachanov, P. Supiot, G. Weirauch, and N. Sadeghi : "Intracavity laser absorption spectroscopy applied to measure the absolute density and temperature of $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ metastable molecules in a flowing N_2 microwave discharge", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.33, pp.2434-2441 (2000)
- (10) A. Lofthuis and P. H. Krupenie : "The spectrum of molecular nitrogen", *J. Phys. Chem. Ref. Data*, Vol.6, No.1, pp.113-307 (1977)
- (11) G. Cernogora, L. Hochard, M. Touzeau, and C. M. Ferreira : "Population of $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ metastable states in a pure nitrogen discharge", *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, Vol.14, pp.2977-2987 (1981)
- (12) G. Cernogora, C. M. Ferreira, L. Hochard, M. Touzeau, and J. Loureiro : "Vibrational populations of $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ in a pure nitrogen glow discharge", *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, Vol.17, pp.4429-4437 (1984)
- (13) E. Augustyniak and J. Borysow : "Kinetics of the ($A^3\Sigma_u^+$, $v=0$) state of N_2 in the near afterglow of a nitrogen pulsed discharge", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.27, pp.652-660 (1994)
- (14) N. Sadeghi, C. Foissac, and P. Supiot : "Kinetics of $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ molecules

- and ionization mechanisms in the afterglow of a flowing N₂ microwave discharge”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.34, pp.1779-1788 (2001)
- (14) B. Krames, T. Glenwinkel-Meyer, and J. Meichsner : “Spatial density profiles of the N₂ metastable state A³Σ_u⁺, the B³Π_g and C³Π_u states in an asymmetric rf discharge”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.34, pp.1789-1798 (2001)
- (15) S. De Benedictis, G. Dilecce, and M. Simek : “LIF measurement of N₂(A³Σ_u⁺, v=4) population density in a pulsed rf discharge”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.31, pp.1197-1205 (1998)
- (16) K. S. Klopovsky, A. V. Mukhovatova, A. M. Popov, N. A. Popov, O. B. Popovicheva, and T. V. Rakhimova : “Kinetics of metastable states in high-pressure nitrogen plasma pumped by high-current electron beam”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.27, pp.1399-1405 (1994)
- (17) J. Levaton, J. Amorim, A. R. Souza, D. Franco, and A. Ricard : “Kinetics of atoms, metastable, radiative, and ionic species in the nitrogen pink afterglow”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.35, pp.689-699 (2002)
- (18) J. Loureiro, P. A. Sá, and V. Guerra : “Role of long-lived N₂(X¹Σ_g⁺, v) molecules and N₂(A³Σ_u⁺) and N₂(a¹Σ_u⁺) states in the light emissions of an N₂ afterglow”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.34, pp.1769-1778 (2001)
- (19) V. Guerra, P. A. Sá, and J. Loureiro : “Role played by the N₂(A³Σ_u⁺) metastable in stationary N₂ and N₂-O₂ discharges”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.34, pp.1745-1755 (2001)
- (20) K. Tao, D. Mao, and J. Hopwood : “Ionized physical vapor deposition of titanium nitride: A global plasma model”, *J. Appl. Phys.*, Vol.91, No.7, pp.4040-4048 (2002)
- (21) Y. Tanaka and T. Sakuta : “Modelling of a pulsed discharge in N₂ at atmospheric pressure”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.32, pp.3199-3207 (1999)
- (22) D. S. Newman, M. Zubek, and G. C. King : “Metastable excitation measurements in CO and N₂ by high-resolution electron impact, using a low work function detector”, *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, Vol.16, pp.2247-2263 (1983)
- (23) M. Simek : “Determination of N₂(A³Σ_u⁺) metastable density produced by nitrogen streamers at atmospheric pressure: 1. Design of diagnostic method”, *Plasma Sources Sci. Technol.*, Vol.12, pp.421-431 (2003)
- (24) M. Simek : “Determination of N₂(A³Σ_u⁺) metastable density produced by nitrogen streamers at atmospheric pressure: 2. Experimental verification”, *Plasma Sources Sci. Technol.*, Vol.12, pp.454-463 (2003)
- (25) H. Inaba : “Detection of atoms and molecules by Raman Scattering and Resonance Fluorescence”, “Laser Remote Sensing of the Atmosphere”, E. D. Hinkley, Ed., Springer-Verlag, Berlin (1976)
- (26) Y. B. Song, Y. Hirakawa, K. Uchino, K. Muraoka, T. Sakoda, K. Yanagishita, and S. Nakamura : “Measurements of molecular densities in low pressure discharge plasmas using laser Raman scattering”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol.35, No.10, pp.5509-5513 (1996)
- (27) A. A. Radzig and B. M. Smirnov : Reference Data on Atoms, Molecules, and Ions, Springer-Verlag, Berlin (1985)
- (28) J. Levaton, J. Amorim, A. R. Souza, D. Franco, and A. Ricard : “Kinetics of atoms, metastable, radiative and ionic species in the nitrogen pink afterglow”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.35, pp.689-699 (2002)

福地 哲生

(正員) 1962年生。1995年8月カリフォルニア大学ロスアンゼルス校大学院物理学部よりPh.D.。1996年2月(財)電力中央研究所入所、現在に至る。放電現象のレーザ計測技術の開発、排ガスの光測定技術の開発、漏洩ガスの可視化技術の開発、レーザ超音波による非破壊検査に関する研究、レーザレーダ研究に従事。応用物理学会会員。