混合絶縁気体中の電子衝突過程

——相乗効果発生機構の検討——

学生員 石垣 卓也* 非会員 広地 祐樹*

正 員 菅原 広剛* 正 員 酒井 洋輔*

Electron-Molecule Collisional Processes in Insulating Gas Mixtures

—— Investigation of Synergy Mechanism ——

Takuya Ishigaki*, Student Member, Yuuki Hirochi*, Non-member, Hirotake Sugawara*, Member, Yosuke Sakai*, Member

In a recent trend that reduction of SF_6 used for electric power equipment is required to avoid global warming, dilution of SF_6 by other gases of less environmental load is considered as a practical solution. Gas mixtures such as SF_6/N_2 and $\text{SF}_6/\text{c-C}_4\text{F}_8$ have a desirable feature called synergy effect that the critical values of reduced electric field $(E/N)_{\text{lim}}$ are higher than the partial-pressure-weighted values obtained from $(E/N)_{\text{lim}}$ of their components. In order to obtain a guide to seek for new insulating gas mixtures with the synergy effect, we have investigated the synergy mechanism from a viewpoint of collaboration between electron energy loss by collisions and electron attachment. The following mechanisms have been indicated as primary factors of the synergy effect; (i) a large attachment cross section of SF_6 lying in a low electron energy region plays the main role of the electron capture; (ii) in order to feed electrons into the low energy region of (i) efficiently, a steep rise of an inelastic collision cross section at its onset energy is required. We have evaluated these factors by a Boltzmann equation analysis, and have synthesized the synergy effect using model gases for demonstration.

キーワード：混合ガス絶縁，絶縁耐力，相乗効果，電子付着，エネルギー損失， SF_6 。

Keywords: Insulating gas mixtures, breakdown strength, synergy effect, electron attachment, energy loss, SF_6 .

1. はじめに

電力機器絶縁に広く用いられている SF_6 ガスは地球温暖化防止のため使用が制限されつつある。代替ガスが模索される中、 N_2 による SF_6 の希釈により SF_6 の低減を図りつつ絶縁性能を維持する混合絶縁方式が検討されている。 SF_6/N_2 混合ガスには絶縁特性の相乗効果が見られ、各組成ガス単独の絶縁耐力の混合比加重平均値よりも高い絶縁性が得られる。図 1 に示す臨界換算電界 $(E/N)_{\text{lim}}$ は、電離係数と付着係数が等しくなる（あるいは電離周波数と付着周波数が等しくなる）ときの換算電界であり、同値以下であれば電子なだれが抑制され絶縁が保たれる。 $(E/N)_{\text{lim}}$ を表す曲線が混合比 0% と 100% を結ぶ破線を上回ることを本論文では相乗効果と呼ぶ。この相乗効果は電子- N_2 分子の非弾性衝突で電子エネルギーが減少し SF_6 分子が電子を捕獲し易くなるため生じると定性的に説明されているが、この点を定

図 1 $(E/N)_{\text{lim}}$ の SF_6/N_2 混合比依存性
Fig. 1. $(E/N)_{\text{lim}}$ for SF_6/N_2 mixtures.

量的に確かめ、相乗効果の機構解明を通じて代替ガス探索の指針を得ることが本研究の目的である。

これまで著者らは SF_6 に N_2 , CO_2 , $\text{c-C}_4\text{F}_8$ を混合させたガス中の電子衝突過程を解析してきた⁽¹⁾。本報告では、同混合ガス中の電子衝突周波数や電子エネルギー損失の混合比依

* 北海道大学大学院工学研究科電子情報工学専攻
〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目
Division of Electronics and Information Engineering, Graduate
School of Engineering, Hokkaido University
N13 W8, Sapporo 060-8628

存性を計算し、それぞれのガスが担っている役割について検討する。また、電子衝突断面積の観点からモデルガスを用いてその役割について検証する。効果的に相乗効果を起こすために必要な電子衝突断面積の特徴を考察した。

2. 解析方法

〈2・1〉 計算条件 電子衝突断面積は Itoh ら(SF_6 ⁽²⁾), c- C_4F_8 ⁽³⁾, Ohmori ら(N_2 ⁽⁴⁾), Hasegawa ら(CO_2 ⁽⁵⁾), Font ら(c- C_4F_8 ⁽⁶⁾)の断面積セットを用いた(図2～図6)。図中の q の添字はmが弾性衝突, aが電子付着, iが電離, vが振動励起, eが電子励起, dが解離反応を表す。また SF_6 の電子付着については、議論の都合により、5種類の付着過程を0～1eV付近に存在する断面積(A1)と5eV付近の断面積(A2)にまとめて扱う。図3のモデルガス N_2 'の断面積 q_e 'については〈4・2〉節で述べる。0°C, 1Torrでボルツマン方程式/プロパゲータ法解析により電子エネルギー分布を計算し、臨界換算電界(E/N)_{lim}を求めた。その結果を SF_6/N_2 については Frechette⁽⁷⁾, SF_6/CO_2 については Aschwanden⁽⁸⁾, $\text{SF}_6/\text{c-C}_4\text{F}_8$ については種田ら⁽⁹⁾の実験値と比較した(図7)。c- C_4F_8 の計算値は異なる断面積を用いそれぞれ算出した。各断面積の特徴から説明される相乗効果発生機構について考察する。

図2 SF_6 の電子衝突断面積 (Itoh ら⁽²⁾)
Fig. 2. Electron collision cross sections of SF_6 (Itoh et al. ⁽²⁾).

図3 N_2 の電子衝突断面積 (Ohmori ら⁽⁴⁾) およびモデルガス N_2 'の電子衝突断面積
Fig. 3. Electron collision cross sections of N_2 (Ohmori et al. ⁽⁴⁾) and the model gas N_2 '.

〈2・2〉 計算方法 本研究では電子衝突周波数、電子エネルギー損失、臨界換算電界の混合比依存性を計算し、その傾向から相乗効果発生の要因を探索する。

電子衝突周波数 R は、規格化された電子速度分布 $f(v)$ 、分子数密度 N 、電子衝突断面積 q 、電子速度 v より以下のように表わされる。

図4 CO_2 の電子衝突断面積 (Hasegawa ら⁽⁵⁾)
Fig. 4. Electron collision cross sections of CO_2 (Hasegawa et al. ⁽⁵⁾).

図5 c- C_4F_8 の電子衝突断面積 (Itoh ら⁽³⁾)
Fig. 5. Electron collision cross sections of c- C_4F_8 (Itoh et al. ⁽³⁾).

図6 c- C_4F_8 の電子衝突断面積 (Font ら⁽⁶⁾)
Fig. 6. Electron collision cross sections of c- C_4F_8 (Font et al. ⁽⁶⁾).

図7 SF₆/N₂, SF₆/CO₂, SF₆/c-C₄F₈ 混合ガスにおける(E/N)_{lim}の混合比依存性 (▽, □, ○: 実験, —: 本解析)
Fig. 7. (E/N)_{lim} for SF₆/N₂, SF₆/CO₂, and SF₆/c-C₄F₈ mixtures (▽, □, and ○: experiment, —: present calculation).

$$R = \int Nqv \cdot f(v)dv \dots\dots\dots (1)$$

電子エネルギーの損失は、電子が全衝突で失った電子エネルギーのうち、それぞれの衝突過程が関与したエネルギー損失の割合を計算することで評価する。個々の電子衝突反応により失ったエネルギーは反応により算出方法が異なる。第 j 種の非弾性衝突の損失エネルギーを $\varepsilon_{\text{loss},j}$ とした時、単位時間あたりのエネルギー損失 ε^* (eV s⁻¹) は(2)式で表現できる。弾性衝突の場合、電子付着の場合、その他の非弾性衝突の場合で求め方が異なる。

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_m^* &= (2m/M) \int \varepsilon \cdot Nq_m v \cdot f(v)dv \\ \varepsilon_a^* &= \int \varepsilon \cdot Nq_a v \cdot f(v)dv \\ \varepsilon_j^* &= \int \varepsilon_{\text{loss},j} \cdot Nq_j v \cdot f(v)dv \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (2)$$

3. 解析結果

〈3・1〉 電子衝突周波数 図8にSF₆/N₂混合ガス中の電子衝突周波数の混合比依存性を示す。換算電界は両組成ガスにおける臨界換算電界値のほぼ中間値であるE/N=250Tdを選んだ。弾性衝突、非弾性衝突を問わず、ほとんどの衝突周波数が混合比に対しほぼ線形に変化しているが、SF₆の低エネルギー部の付着周波数 R_{A1} のみに上に凸の依存性が見られた。SF₆が100%に近い条件では、N₂混合によるSF₆の電離周波数の減少をN₂の電離周波数の増加がほぼ相殺しているが、SF₆の低エネルギー部で起こる付着周波数の減少は緩やかで(E/N)_{lim}が混合比ほど低下しない理由となっている。この傾向は、解析を行なった100Tdから400Tdの範囲において共通してみられた。よって、SF₆/N₂混合ガス絶縁特性において、SF₆の低エネルギー部における付着が相乗効果のひとつの役目を担っているものと考えられる。

図8 付着、電離周波数の混合比依存性 (SF₆/N₂, 250Td)
Fig. 8. Mixture ratio dependence of electron attachment and ionization frequencies (SF₆/N₂, 250Td).

図9 混合ガスの電子エネルギー損失割合の混合比依存性 (SF₆/N₂)
Fig. 9. Mixture ratio dependence of electron energy loss ratio (SF₆/N₂).

図10 各反応の電子エネルギー損失割合の混合比依存性 (SF₆/N₂, 250Td)
Fig. 10. Mixture ratio dependence of electron energy loss ratio (SF₆/N₂, 250Td).

〈3・2〉 エネルギー損失レート 図9に SF_6/N_2 混合ガス、 $E/N=250\text{Td}$ における各ガスの電子エネルギー損失割合の混合比依存性を示す。同図より N_2 による電子エネルギー損失は N_2 の混合比以上であり、またその傾向は低 E/N の方が顕著であることが判る。

N_2 はエネルギー損失において混合比以上に貢献している。主要な過程である電子励起と振動励起について衝突別のエネルギー損失割合 η を図10に示す。添字 e と v が電子励起と振動励起を表す。 N_2 の電子エネルギーの損失は電子励起衝突によるものがほとんどであることがわかる。さらに混合比に対し上に凸の依存性を示していることから、 SF_6/N_2 混合ガスにおいては N_2 の電子励起が注目している相乗効果を発生させるための要因になっていると考えられる。この傾向もまた 100Td から 400Td の範囲で共通しており、従来の定性的な説明が定量的に確認できた。

4. モデルガスを用いた相乗効果再現の試み

3章の結果から SF_6 の低エネルギー部における電子付着と N_2 の電子励起衝突が絶縁特性の相乗効果に大きく寄与していることが示唆された。本章では、〈4・1〉節で独自に構成した断面積セットを持つモデルガスを用いて、低エネルギー部における電子付着の寄与を確かめる。〈4・2〉節では、実ガスの断面積を基本にしたモデルガスとして、 N_2 の断面積の一部を変更したガスを想定して電子励起衝突の寄与を確かめる。

〈4・1〉 低エネルギー部における付着の寄与 〈3・1〉節で示唆された条件を確認するために幾つかモデルガスを用いて相乗効果による $(E/N)_{\text{lim}}$ の上昇度合いを確認した。まず、 SF_6 の低エネルギー部に存在する大きな付着断面積の働きを確かめるため図11、図12のモデルガス(Model Gas 1, 2)と、それらと混合させるガスとして図13のモデルガス(Model Gas 3)を考えた。それぞれのモデルガスに与えた特徴は次のとおりである。

モデルガス1は SF_6 を基に低エネルギー部の電子付着断面積を充分小さくしたものである。

モデルガス2はモデルガス1の低エネルギー部の電子付着断面積を大きくしたものである。

モデルガス3はモデルガス1、2において非弾性衝突が存在せず、断面積の連続性が断たれているエネルギー領域を補完するための非弾性衝突断面積を想定したものである。

それらのモデルガスの $(E/N)_{\text{lim}}$ の混合比依存性を計算したものが図14である。モデルガス2と3の混合の場合、付着の断面積が大きいため、純ガス時に高い絶縁耐力を示すのは当然だが、混合比に対して上に凸の度合いが明らかに他を上回る。よって低エネルギー部の付着断面積が大きいた方が絶縁特性の相乗効果も大きく現れることが示された。

〈4・2〉 立ち上がりの急な電子励起の寄与 次に、〈3・2〉節で示された電子励起の寄与について検証する。 SF_6/N_2 と $\text{SF}_6/\text{c-C}_4\text{F}_8$ の断面積を比べた時、電子励起断面積の

図11 モデルガス1の電子衝突断面積

Fig. 11. Electron collision cross sections of Model Gas 1.

図12 モデルガス2の電子衝突断面積

Fig. 12. Electron collision cross sections of Model Gas 2.

図13 モデルガス3の電子衝突断面積

Fig. 13. Electron collision cross sections of Model Gas 3.

立ち上がりの急峻さが異なる。この点に注目して、 N_2 の電子励起断面積を、立ち上がりの急な $\text{c-C}_4\text{F}_8$ の電子励起断面積と入れ替えた N_2 ライクモデルガス(N_2')を考える(図3, q_e)。これを SF_6 と混合させ絶縁特性相乗効果の混合比依存性を求めたものが図15である。

図15より上記の特徴を付与するだけで純粋な SF_6 の絶縁耐力をも上回るほどの相乗効果が得られた事がわかり、混合絶縁ガス相乗効果において立ち上がり急な電子励起を

図 14 各モデルガス混合時の $(E/N)_{lim}$ の混合比依存性
Fig. 14. $(E/N)_{lim}$ for Model Gases mixtures.

図 15 SF_6/N_2 混合ガスと SF_6/N_2' 混合ガスの $(E/N)_{lim}$
Fig. 15. $(E/N)_{lim}$ for SF_6/N_2 mixtures and SF_6/N_2' mixtures.

もっているガスを用いることが極めて効果的であることが示された。

〈4・3〉 相乗効果発生要因の考察 以上のように大きな相乗効果が得られた機構を考察する。まず電子は電界により加速され徐々に大きなエネルギーを持つようになる。次に衝突を起こし、衝突が非弾性衝突ならば電子はその反応に応じてエネルギーを奪われる。この時、損失エネルギーが閾値と等しく、電子衝突断面積の立ち上がりが急である場合、閾値に近いエネルギーで衝突が起これ、衝突後の電子が持つエネルギーは 0eV に近くなる。そのエネルギー領域、特に $0\sim 1\text{eV}$ 付近では SF_6 は大きな付着断面積を持つため、非弾性衝突後の電子を捕獲しやすい。このように電子励起断面積の立ち上がりが急なことによりエネルギー損失から電子付着までの過程が直接結びつく。 N_2 と N_2' の SF_6 混合時における電子エネルギー分布の変化を図 16 と図 17 に示す。電子励起断面積の立ち上がりが急な N_2' を用いた混

図 16 SF_6/N_2 中の電子エネルギー分布
Fig. 16. Electron energy distribution of SF_6/N_2 .

図 17 SF_6/N_2' 中の電子エネルギー分布
Fig. 17. Electron energy distribution of SF_6/N_2' .

合ガスでは、電子励起の閾値 7.6eV 付近の電子エネルギー分布にくぼみが生じ、低エネルギー部に運ばれる電子が多くなっていることがわかる。こうした働きにより大きな相乗効果が得られたと考えられる。

5. まとめ

本報告では混合絶縁気体中における相乗効果発生機構について重要と思われる要因を吟味した。結果をまとめると以下ようになる。

- (1) 混合する二つのガスはそれぞれが役目を担っている。一方は付着を担う働きをし、他方は電子のエネルギーを奪う。
- (2) 電子付着を担うガスは低エネルギー部に大きな電子付着断面積をもっていることが望ましい。 SF_6 はこの要請に沿う。
- (3) 電子のエネルギーを奪うガスは立ち上がりの急な電子励起断面積をもつことで非弾性衝突後の電子エネルギーを小さな値とすることができる。 N_2 や、特に $c\text{-}C_4F_8$ はこの

ような特性を備える。

(4) これらの特徴が組み合わされることで電子捕獲が促進され今回本論文で扱った相乗効果として現れるものと考えられる。今後絶縁ガスの候補（新種のガスなど）について、相乗効果を予測する際には、(2)(3)の特徴が重要な観点となるものと思われる。

今後は粒子モデルも併用し実機器における不平等電界などを考慮した解析を進める予定である。

謝 辞

本研究は文部科学省科学研究費補助金を受けて行われた。また、著者の一人石垣は財団法人ウシオ育英文化財団奨学生である。

(平成 15 年 6 月 23 日受付, 平成 15 年 10 月 1 日再受付)

文 献

- (1) T. Ishigaki, H. Sugawara, and Y. Sakai : "On Synergy Effect of Insulating Gas Mixtures", 2003 National Convention Record IEE Japan, No. 1-090 (2003-3) (in Japanese)
石垣卓也・菅原広剛・酒井洋輔 : 「混合絶縁気体における相乗効果発生機構の検討」, 平成15年電気学会全国大会, No. 1-090 (2003-3)
- (2) H. Itoh, T. Matsumura, K. Satoh, H. Date, Y. Nakao, and H. Tagashira : "Electron transport coefficients in SF₆", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 26, pp. 1975-1979 (1993)
- (3) H. Itoh, T. Miyachi, M. Kawaguchi, Y. Nakao, and H. Tagashira : "Electron transport coefficients in SF₆ and c-C₄F₈ mixtures", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 24, pp. 277-282 (1991)
- (4) Y. Ohmori, M. Shimozuma, and H. Tagashira : "Boltzmann equation analysis of electron swarm behaviour in nitrogen", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 21, pp. 724-729 (1988)
- (5) H. Hasegawa, H. Date, Y. Ohmori, P. L. G. Ventzek, M. Shimozuma, and H. Tagashira : "Measurements of the drift velocity of electrons in mixtures of nitrogen and carbon dioxide from 100 to 1000 Td", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 31, pp. 737-741 (1998)
- (6) G. I. Font, W. L. Morgan, and Mennenga : "Cross-section set and chemistry model for the simulation of c-C₄F₈ plasma discharges", *J. Appl. Phys.*, Vol. 91, pp. 3530-3538 (2002)
- (7) M. F. Frechette : "Experimental study of SF₆/N₂ and SF₆/CCl₂F₂ mixtures by the steady-state Townsend method", *J. Appl. Phys.*, Vol. 59, pp. 3684-3693 (1986)
- (8) Th. Aschwanden and Ph. D. Dissertation : "Die Ermittlung physikalischer Entladungsparameter in Isoliertgasen und Isoliertgasgemischen mit einer verbesserten Swarm-Methode", Thesis Eidgenössischen Technischen Hochschule (ETH), Zürich (1985)

- (9) 種田 淳・下妻光夫・田頭博昭 : 「SF₆とフロン混合ガスの破壊電圧特性 SF₆と1-C₃F₆混合, SF₆とc-C₄F₈混合ガスについて」, 第20回応用物理学会北海道支部学術講演会講演予稿集, No. B36 (1985)

石 垣 卓 也

(学生員) 1978年6月25日生。2002年3月北海道大学工学部電子工学科卒業。同年4月同大学大学院工学研究科博士前期課程電子情報工学専攻入学。同在学中。

広 地 祐 樹

(非会員) 1980年8月3日生。2003年3月北海道大学工学部電子工学科卒業。同年4月同大学大学院工学研究科博士前期課程電子情報工学専攻入学。同在学中。

菅 原 広 剛

(正員) 1967年7月12日生。1992年3月北海道大学大学院工学研究科電気工学専攻修士課程修了。同年4月同大学工学部助手。1998年4月同大学大学院工学研究科電子情報工学専攻助教授, 現在に至る。博士(工学)。応用物理学会会員。

酒 井 洋 輔

(正員) 1944年7月28日生。1973年3月北海道大学大学院工学研究科電気工学専攻博士課程修了。同年4月同大学工学部講師。同助教授, 同大学医療技術短期大学部教授を経て, 現在北海道大学大学院工学研究科電子情報工学専攻教授。工学博士。照明学会, 日本物理学会, 応用物理学会会員。