

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：32678

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560349

研究課題名(和文) SF6代替ガスとしての自然ガスの有効性の検証

研究課題名(英文) Verification of effect of natural gas for substitution of SF6

研究代表者

湯本 雅恵 (YUMOTO, MOTOSHIGE)

東京都市大学・工学部・教授

研究者番号：10120867

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：窒素は放電によって内部エネルギーを長時間にわたり蓄積する性質がある。そのため、窒素を含む雰囲気中で放電を繰り返すと、放電を停止した後も空間に電子が供給され続ける。したがって、電力機器では事故後の電圧復帰時に問題が生じる危険性がある。そこで、電子を付着するガスや内部エネルギーを解放するガスを微量混合して、電子の発生を抑制する効果を確かめた。その結果、脱励起させるガスは危険性が増すのに対して、付着性のガスが有効であり、SF6の効果が大きかった。また、高気圧の空間で長時間にわたり内部エネルギーを蓄積するのは、放電で発生した窒素原子である可能性が高いことが推測できた。

研究成果の概要(英文)：Nitrogen molecule accumulates internal energy easily during a long period by electrical discharge. Accordingly, electrons are supplied continuously even after discharge interruption. Phenomenon of electron supply is very dangerous for the power equipment. Thus, to decrease the number of supplied electrons, small amount of gases which have properties with electron attachment effect or de-excitation effect of internal energy. Results showed that de-excitation gas was not effective. On the other hand electron attachment gas, especially SF6 was effective. From the results it was also deduced that nitrogen atom accumulates internal energy for a long period under the condition of high pressure.

研究分野：放電工学

キーワード：SF6代替ガス 窒素ガス 電子供給 電子付着 脱励起 窒素原子

1. 研究開始当初の背景

- (1) 電力機器の絶縁ガスとして不可欠な SF₆ は地球温暖化係数が炭酸ガスの 23,700 倍もあり、排出量の削減が求められている。そこで、その代替ガスの研究が進められている。
- (2) 毒性やオゾン層破壊などの影響を考慮すると、SF₆ をしのぐ絶縁特性を有する単独ガスは見いだせていない。
- (3) したがって、電流を遮断する部分では SF₆ の使用量を削減する方法が、絶縁を求められる部分では自然ガスの利用が検討されている。
- (4) 自然ガスの代表である窒素は環境負荷を考えれば有望であり、窒素を主体とした混合ガスの検討が進められている。
- (5) しかし、放電の発生により窒素は内部エネルギーを長時間蓄積する性質があり、そのエネルギー解放によって発生する電子が絶縁特性に及ぼす影響を把握する必要がある。
- (6) あわせて、絶縁特性を支配する電子の発生を抑制する方法の検討が必要である。

2. 研究の目的

- (1) 放電の発生によって窒素が蓄積する内部エネルギーの解放作用により発生する電子の数を算出する。
- (2) 発生する電子数を少なくするために有効なガスの選定を行い、その有効性を検証する。
- (3) 電子の供給過程を解析し供給電子数の抑制に有効な方法を提言する。

3. 研究の方法

(1) 電力機器においては、事故が発生した後の電圧復帰時に再度放電が生じないようにすることが重要である。その際、事故時の放電により内部エネルギーを蓄積した窒素の振舞いを明らかにする必要がある。そこで、実用的な電界分布を実現するために準平等電界となる半球棒-平板電極を用い、半球電極に図 1 に示すような負の矩形波電圧を反復して印加し、その印加時間の間隔 τ を変化させ、それぞれの電圧印加から放電発生までの遅れ時間 t を測定する。

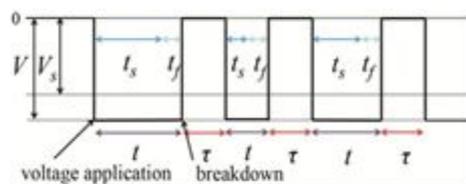


図 1 電圧印加の繰り返し

(2) 放電遅れ時間の測定結果を図 2 に示すラウエ・プロットに描き、確率的に変動する統

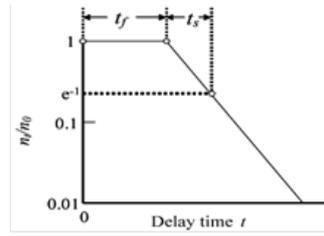


図 2 ラウエ・プロット

計遅れ時間 t_s から単位時間あたりに発生する電子数を算出する。

- (3) 内部エネルギーの解放のため混合するガスの数密度を変化させ、発生電子数に及ぼす効果の違いを明らかにする。
- (4) 蓄積される内部エネルギーの大きさは放電時に空間に注入されるエネルギーに依存する。そこで、放電電流を変化させ、発生電子数を算出し、空間に注入される放電電荷量に対する依存性を明らかにする。
- (5) 内部エネルギーの解放作用の検証のため、放電停止後に放出される、励起準位から発せられる光の強度を測定する。

4. 研究成果

(1) これまでの成果として、電子の発生により破壊確率が上昇してしまうことが明らかになっている。また、電子の発生は陰極表面での光電子放出あるいは二次電子放出機構によるものであることが実験的に予測できた。そこで、窒素が内蔵しているエネルギーを解放させる際の反応過程が電子の放出量にどのように影響を与えるかを実験的に確かめる。そのために、内部エネルギーの解放反応速度の違うガスとして、早い順に NO、N₂O、CO₂ を選択した。また、解放作用は無いが、発生した電子を捕獲する性質を有する SF₆、O₂、ならびに両者の性質を有する CF₃I を比較対象とし、ガスを 1% 混合した場合に得られた結果を図 3~5 に示す。

これらの結果を比較すると、窒素単独の場合には多くの電子が放電停止後 1 秒以上経過しても発生しているのに対し、ガスを混合すると窒素以外の場合には発生数に変化が認

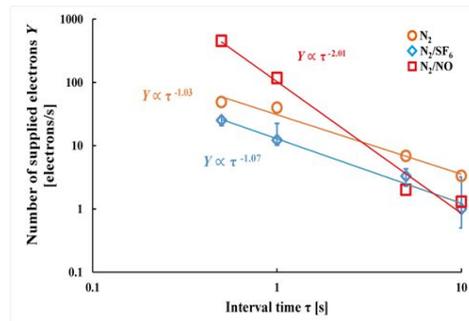


図 3 N₂ に NO、SF₆ を混入させた場合の電子供給数の電圧印加の時間間隔依存性

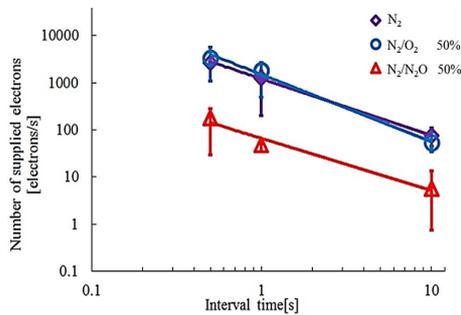


図4 N₂にN₂O、O₂を混入させた場合の電子供給数の電圧印加の時間間隔依存性

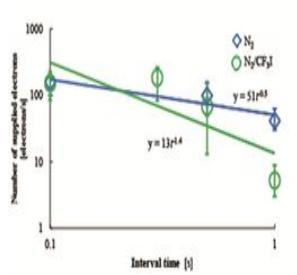


図5 N₂にCF₃Iを混入させた場合の電子供給数の電圧印加の時間間隔依存性

められる。これらの結果から、発生した電子を付着する酸素の効果は顕著には表れないことが明らかとなった。それに対して、SF₆とN₂Oの場合、電子の発生に対する抑制効果のあることが分かった。また、NOとCF₃Iは特性が窒素単独の場合と交差する結果が得られた。つまり、電圧が放電停止後、短時間で印加された場合には、多くの電子が発生し、時間の経過とともに供給数が急激に減少している。そこで、反応過程の検討を行うために、混合するガス分子の数密度を変化させた実験を次に行った。

(2) 前述のように複数のガスの効果を比較したところ、ガスの種類によって振る舞いに違いが現れることが明らかとなった。そこで、両者を比較する為にそれぞれの反応を引き起こす代表的なガスとしてNOとSF₆を用いた結果を比較する。混合するガス分子の混合量を多くすると、放電電圧が変化してしまうため、最大で1%とした。ここで、図3~5に示す特性の傾きは、電子の発生数が時間と共に減少する速さを意味するので、減少速度と定義し、減少速度の混入ガス分子の粒子数密度依存性としてまとめた結果を図6に示す。なお、減少速度の絶対値は測定条件によって変動するので、窒素単独の場合に得られる速度で規格化した値を縦軸としてある。

SF₆の場合には減少速度は窒素単独の場合と変わらないことがわかる。つまり、電極で発生した電子が空間で付着されることにより測定された電子数が減少しているものと判断でき、電子の発生過程はガスを混入しても窒素単独の場合と同様の過程である可能性が高いものと判断できる。

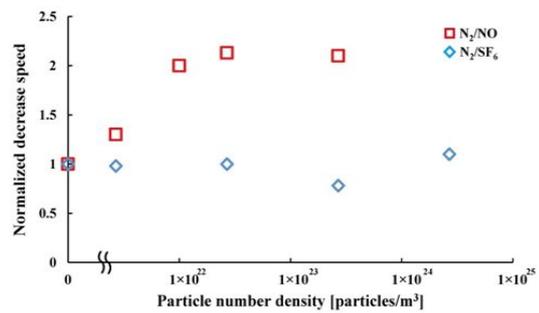


図6 減少速度の混入ガス分子の数密度に対する依存性

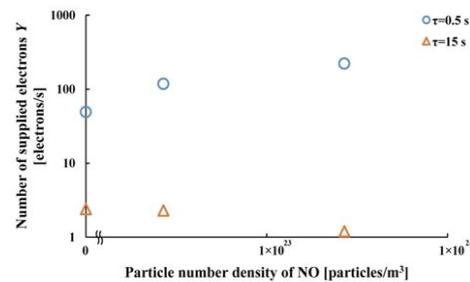


図7 NOの数密度に対する発生電子数の放電の繰り返し時間依存性

一方、NOの場合には減少速度が窒素単独に比べ約2倍大きいことがわかる。つまり、放電停止後5秒以上経過すると図3に示すように発生する電子数は窒素単独に比べ大幅に減少するものの、短時間ではむしろ単独の場合よりも多く発生している。これは、脱励起反応によって短時間で内部エネルギーが解放されてしまい、解放されたエネルギーによって短時間に多くの電子が発生したものと考えられる。それに対して、時間が経過すると脱励起反応が進行し、内部エネルギーが解放され、電子の発生を引き起こすだけのエネルギーが十分に残留しなくなり、発生電子数が少なくなって、減少速度が大きく求めたものと考えられる。たとえば図7では、放電停止後0.5秒ではNOの数密度が高くなる程、多くの電子が発生している。つまり、NOが脱励起に寄与し、その結果、発生する電子数が増加しているものと考えられる。それに対して、15秒経過すると、発生する電子数は大幅に減少し、混入するNOの数密度に対し減少する傾向が認められる。前述のように、NOが多く存在すれば短時間で内部エネルギーを開放してしまっていることを裏付けている。

事故時の電圧復帰(瞬時停電の時間)は1秒以下で行われる。したがって、付着作用のあるガスの方が、絶縁の観点で比較すれば、電圧復帰時の危険性を低減できる可能性が高いことを示しているものと判断できる。

(3) O₂の付着作用の効果が顕著でなかった原因を確かめるためにO₂とN₂Oの違いを比較した結果が図8である。

N₂Oの衝突断面積はO₂と比べてほぼ1桁

大きな値を有しているため、 O_2 の粒子数密度を1桁多くすると、 N_2O と同等の特性が得られることが期待できる。しかし、発生する電子数の差は図中の矢印の長さに比べ大きな違いが認められ、その差は一桁以上あることがわかる。したがって、単に反応が生じる反応確率だけではなく、衝突時の電子のエネルギーにも依存することが想像できる。つまり、高いエネルギーの電子が衝突によってエネルギーを失った後に付着反応や脱励起反応をするのが効果的に発生電子数を抑制することに有効であることが予測できた。

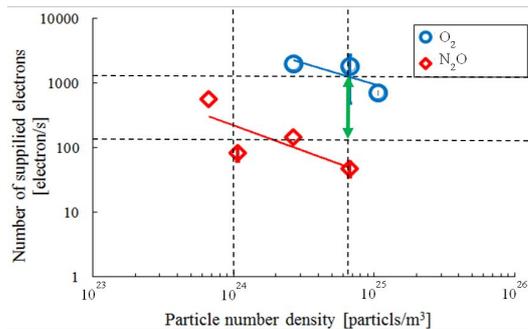


図8 O_2 と N_2O における発生電子数の混入ガス分子の数密度依存性

(4) これまでの事実から、内部エネルギーの蓄積と、その解放反応が電子の発生数を支配していることがわかった。ここで、窒素が内部エネルギーを蓄積するのは、放電時に発生する大きなエネルギーを有する電子が窒素分子と衝突をして電子軌道を上準位に励起した結果生じる準安定励起分子の生成と、窒素原子を解離することが原因であると考えられる。したがって、衝突時の電子のエネルギーがほぼ同一であれば、衝突する電子数、つまり電流値に依存して内部エネルギーが蓄積されるはずである。本実験では、印加電圧は同一になるように条件を整えている。したがって、放電現象は確率的な要素に支配されるものの、放電時に発生する電子のエネルギーに大きな違いは無いはずである。

そこで、蓄積される内部エネルギーの大きさを変化させるために、放電電流の値を、回路に挿入している抵抗の値を代えることで変化させた。得られた結果を、放電電流の時間積分値である放電電荷量に対する依存性としてまとめたグラフを図9に示す。

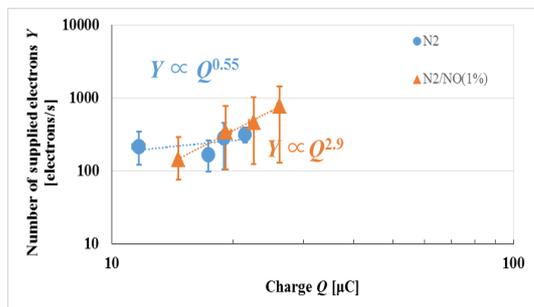


図9 放電停止の0.5秒後に発生する電子数の放電電荷量依存性

図9より、窒素単独の場合には、放電後0.5秒経過した後に発生する電子数は放電電荷量に対してわずかに増加していることがわかる。それに対して、NOを混入すると、発生電子数は放電電荷量の値に大きく依存して増加することを示している。いずれの場合も、電子は蓄積された内部エネルギーに依存して発生することがわかる。また、NOの場合には放電電荷量に大きく依存することから、反応過程において、発生した内部エネルギーを有する粒子間の反応が大きく寄与していることが予想される。

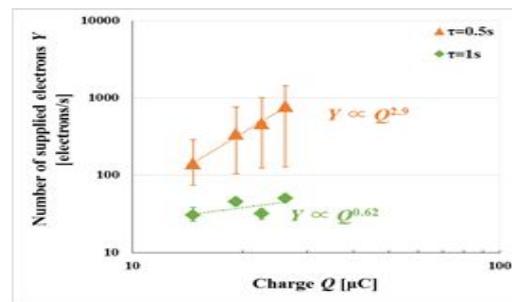


図10 発生電子数の放電停止後の時間による放電電荷量依存性

ところで、図7に示したように、NOを混入した場合には、放電停止後、短い時間領域では混入するNOの数密度に依存して発生する電子数の増加割合が高いのに対して、時間が経過するとほとんど変化しないことを示した。さらに図10に示すように、放電停止後の短い時間領域では放電電荷量に大きく発生電子数が依存していることがわかる。しかし、時間が経過すると依存性は小さくなっている。これらの結果から、当初予想したように、NOを混入した場合には電子の発生はNOが脱励起に寄与して、短時間に多くの内部エネルギーを解放することが原因と判断できる。また、前述のようにエネルギーを内蔵している粒子同士の衝突反応が電子の発生に大きくかかわっていることが予想できる。

(5) これまでの結果から、事故時に発生する放電によって窒素がエネルギーの高い電子と衝突して、内部エネルギーとして蓄積する反応が、放電停止の後に時間が経過しても電子が供給される原因と判断できる。つまり、窒素原子あるいは準安定励起分子が内部エネルギーを蓄積している可能性が高いため、準安定励起分子が脱励起する反応において、あるいは窒素原子が再結合する反応においてNO分子が関与しているものと考えられる。これらの反応により内部エネルギーをNO分子が吸収して100ns程度の短時間NO分子の電子軌道は上準位に励起され、そこから脱励起する際に放出される光を観測することとした。このように、NOの上準位の寿命は非常に短いため、放電停止後に観測されるNOからの発光は、NOが放電によ

て励起されたことによるものではなく、本研究で着目する反応を反映している信号と考えられる。

測定には、NO の励起準位から発せられる波長帯域である 210 ~ 280nm の光を観測できるように中心波長 238nm で半値幅 12nm のバンドパスフィルタと光電子増倍管を用いた。オシロスコープを用いて観測された電極間の端子電圧 (青) と光電子増倍管の出力信号を図 11 に示す。画面には 100ms 間の信号が表示されており、図中のひげ状の細かなパルス信号 (赤) が NO から発せられた光による出力である。

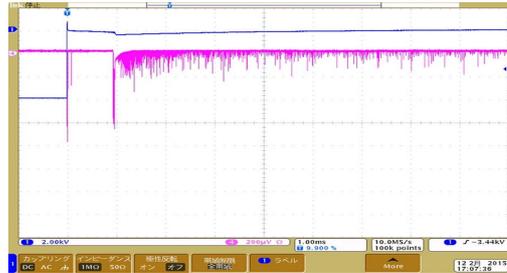


図 11 放電停止後に観測される光信号

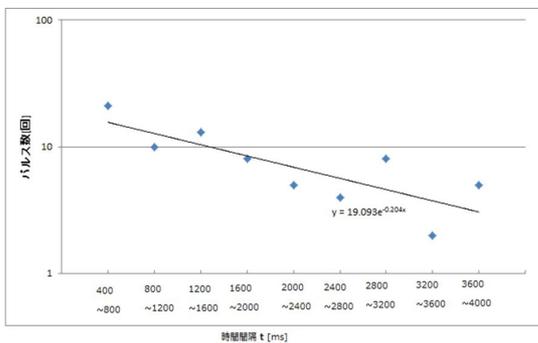


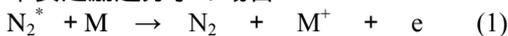
図 12 400ms ごとの光信号パルス数の推移

光信号は時間の経過とともに、発生頻度が減少していることがわかる。光信号によるパルス数を 400ms 間隔で計数した結果を図 12 に示す。

ばらつきは大きいものの、光信号は片対数グラフにおいてほぼ直線的に減少しており、指数関数で表現できる物理現象であると判断できる。また、光強度の減衰の時間定数は 2 ~ 6 秒程度と求まり放電停止後 10 秒程度まで、信号が検出できる程度の光強度であることが確かめられた。つまり、窒素が蓄積する内部エネルギーが放電停止後長時間にわたって電子を放出し続けるエネルギー源になっているとの推測は妥当であると判断した。

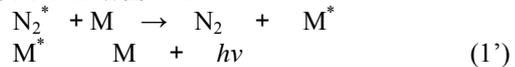
(6) 内部エネルギーを蓄積するのは、前述のように準安定励起分子が原子と考えられる。そこで、2つの場合の反応過程を仮定した。

準安定励起分子の場合



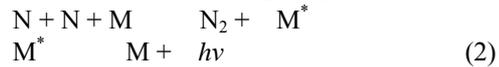
ここで M は電極であり、エネルギーを電極が吸収し電子を放出する二次電子放出過程となり、窒素単独の場合あるいは付着性ガスを混入した場合に該当する。NO が M として

作用する場合には



となり、空間で光 ($h\nu$) が発せられ電極から光電子が放出される過程である。

原子がエネルギーの蓄積をしている場合



この場合の M は窒素単独あるいは付着性ガスを混入した場合には電極となる。NO を混入した場合には NO が M として振る舞い、光電子放出過程となる。

これらの反応過程を判断するためには反応速度方程式と測定結果とを比較することが有効である。いずれの式においても、成果の(5)項の結果を参考にして NO が寄与する場合には、内部エネルギーを有する粒子数密度を $[X]$ 、反応速度定数を k と表現すると、

$$\frac{d[X]}{dt} = -k[X]^m [NO]^n \quad (3)$$

となる。研究成果の(4)項で確かめられた放電電荷量の依存性から考えれば X に大きく依存する反応である。つまり、 m が 1 以上の値になり、(2)項の結果ならびに(5)項で確認された NO の励起準位から放出される光の検出結果も含め、総合すると(2)式による反応が優勢と判断するのが妥当と思われる。さらに、窒素の準安定励起分子の放射寿命は秒程度と長いことが知られているが、圧力の高い環境では衝突による脱励起が進行しやすく、秒オーダーの時間まで内部エネルギーを保存する確率は低いものと考えられる。したがって、本研究課題において注目した現象は、窒素原子が内部エネルギーを長時間にわたって蓄積しているために引き起こされたもの、と考えるのが妥当と判断できる。

(7) 得られた成果をまとめると、 SF_6 に代わるガスとして、空気を含む自然ガスの使用の可能性は高いと判断できる。しかし、窒素を含むガスを用いる場合には、電圧復帰時の事故を防ぐ必要がある。それは、事故時に生成した内部エネルギーを有する窒素原子の残留のために長時間にわたって電子が供給されてしまうためであると考えられる。その対策としては、付着性ガスを微量混入することが有効と判断する。これは、発生した電子を付着により後続の放電を引き起こす電子を捕獲することによる効果である。その際、 SF_6 は有力な候補となる。電子を捕捉するためには 1% 以下の微量の混合でよく、使用量は現状に比べ、2 桁程度の削減が可能である。 CF_3I も効果としては大きく、微量の CF_3I 混合もある程度は効果的であり、代替ガスとなりうる。しかし、放電によりヨウ素が解離してしまう問題があり、その対策が必要となる。

ところで、空間に存在する電子のエネルギーを低くする方法が見いだせれば、付着による電子の捕捉により電圧復帰時に生じる事

故の発生を減らす可能性も期待できることが明らかとなった。

<引用文献>

黒木 雄太、湯本 雅恵、高気圧窒素ガスにおける NO 、 SF_6 ガス混合による初期電子抑制、電気学会論文誌 A、127 巻、2007、777-783

濱野 修一、小林 史典、岩尾 徹、湯本 雅恵、高気圧窒素中における繰り返し放電時の初期電子供給 - 電子付着作用による絶縁破壊特性 -、電気学会論文誌 A、130 巻、2010、704-709

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 1 件)

石渡 泰隆、木村 千穂里、鈴木 博樹、湯本 雅恵、窒素中における繰り返し放電時の電子発生過程の検討、電気学会論文誌 A、査読有、135 巻、2015、198-203
DOI:10.1541/ieejfms.135.198

[学会発表](計 8 件)

石渡 泰隆、木村 千穂里、鈴木 博樹、湯本 雅恵、窒素中における繰り返し放電時の電子供給過程の検討、電気学会 A 部門大会、1 巻、108-113、信州大学(長野)2014

石渡 泰隆、岩尾 徹、湯本 雅恵、高気圧窒素中での供給電子数の抑制に及ぼす SF_6 、 NO の影響、電気学会 A 部門大会、1 巻、416-421、横浜国立大学(横浜)2013
Yasutaka Ishiwata, Toru Iwao, Motoshige Yumoto, Effect of NO on Increase of Supplied Electrons Number Under Repetitive Discharge in N_2/NO Gas Mixture, Proc.18th Inter. Symp. on High Voltage Engineering, 1 巻, 1564-1567, Seoul (Korea) 2013

Isao Nagashima, Yasutaka Ishiwata, Toru Iwao, Motoshige Yumoto, Decreases of Supplied Electron's Number in Nitrogen Rich Gas Mixture, Proc.14th Inter. Conf. on Gas Discharges and Their Appl., 1 巻, 472-475, Beijing (China), 2012

6. 研究組織

(1)研究代表者

湯本 雅恵 (YUMOTO Motoshige)

東京都市大学・工学部・教授

研究者番号：10120867