

# パルスレーザー誘導プラズマ法での電気絶縁ガスの 電子とイオン挙動の観測\*

西 嶋 喜 代 人 \*\*  
 為 広 貴 幸 \*\*\*  
 大 庭 剛 \*\*\*  
 生 澤 泰 二 \*\*

## Observation of Electron and Ion Behaviors in Dielectric Gases Using a Pulsed Laser-Induced Plasma Method

Kiyoto NISHIJIMA, Takayuki TAMEHIRO, Tsuyoshi OHBA and Yasuji IZAWA

A laser beam ( $\lambda = 355$  nm, 1~30mJ) of ~4 ns pulse duration transversely directed on the axis of a DC uniform field gap for dielectric gases produces a current impulse in the external circuit. The analysis of the electrical signals characterized by two components in the time scale allows us to estimate the swarm parameters of electrons and ions moving in the gap.

From these laser-induced plasma investigations for  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $CO_2$ ,  $SF_6$ , room and artificial airs,  $N_2/O_2$ ,  $N_2/H_2O$ ,  $N_2/NO$ ,  $N_2/SF_6$  gases at atmospheric pressure, the electron drift velocity and effective ionization coefficient as a function of the reduced electric field strength below the breakdown threshold are derived from the fast component of electrical signal, while the positive and negative ion velocities are also derived from the slow component of the same signal.

The most experimental results are found to be in good agreement with previous theoretical and experimental results. But in the case of the laser-produced plasma with larger amounts of the charged particle, it becomes necessary to take into account space charge effects.

**Key Words:** Gaseous Dielectrics, Pulsed Laser, Laser-Produced Plasma, Electron, Positive ion, Negative ion, Swarm Parameter,  $N_2/O_2$ ,  $N_2/NO$ ,  $N_2/SF_6$ , Drift Velocity, Effective Ionization Coefficient

### 1. まえがき

電気絶縁ガス中の電子、イオンの挙動は、その火花破壊特性と密接に関係する。荷電粒子のスウォームパラメータの計測<sup>(1),(2)</sup>は、実験的制限から、大気圧以下の低い

ガス圧力で一般に行われている。

電子の電離成長を決定する実効電離係数（電離係数から付着係数を差し引いた正味の電離係数）は、古くは低気圧の定常タウンゼント法で実測されたが、最近ではパルスレーザーを陰極面に照射して得られた初期電子源を用いたパルスタウンゼント法<sup>(3)</sup>で計測されつつある。また、後者のパルスタウンゼント法では、電子の走行時間からドリフト速度が同一実験で計測可能である。さらに、質量が重く、電子に比べて極めて遅い正・負イオンのドリ

\* 平成16年11月30日受付

\*\* 電気工学科

\*\*\* 電気工学専攻博士課程前期

フト速度が、またパルスタウンゼント法で測定されつつある。

実用的な最適電気絶縁混合ガスの調査では、大気圧のような高いガス圧力での荷電粒子のスウォームの挙動が把握される必要がある。特に、ガス圧力に依存した電子の3体付着作用、混合ガス成分に依存した荷電粒子の輸送係数、さらに実効電離係数の相乗効果等を、実測から明らかにする必要がある。これらの実測に有効な方法は、平等電界ギャップ中にパルスレーザーで電離プラズマを発生させ、その荷電粒子の移動によって外部回路に誘導された電流波形を解析する方法<sup>(4),(6)</sup>(パルスレーザー誘導法)である。この誘導電流は、短時間領域が電子電流に、そして長時間領域がイオン電流に対応する。

本報告では、760 Torr のガス圧力で、主な電気絶縁ガスである空気の構成ガスと SF<sub>6</sub> ガス及びそれらの混合ガスに関して、パルスレーザー誘導法を用いて、電子の実効電離係数とドリフト速度、そして正・負イオンのドリフト速度の計測結果を示す。特に、レーザー誘導法で生成した電離プラズマのガス組成依存性と、そのプラズマの空間電荷電界が電子の実効電離係数に与える効果を明らかにする。

2. 実験装置と方法

図1は、放電密閉容器、試料ガス操作、パルスレーザー照射、電気回路そして電気信号観測系からなる実験装置の概略を示す。荷電粒子のスウォーム実験で使用する平等電界ギャップは、密閉容器内に直径13cm のロゴスキー電極と直径40cm の平板電極をギャップ長  $d=2.5$  また  $5.0$  cm で垂直に配置して構成される。放電密閉容器は、内直径50cm で高さ70cm のステンレス容器で、放電光観測とパルスレーザー入射の目的に石英ガラス窓が3ヶ所設けられる。試料ガスは、この密閉容器を油回転ポンプ RP と拡散ポンプ DP で約  $2 \times 10^{-5}$  Torr まで真空排気した後、20°C換算でガス圧力  $P_{20}=760$  Torr で封入したものである。N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, SF<sub>6</sub>, N<sub>2</sub>/NO 混合の各ガスは、99.999 以上の純度の市販容器封入ガスを使用した。N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> と N<sub>2</sub>/SF<sub>6</sub> の各混合ガスは、各単独ガスの分圧比で混合したものを使用する。なお、H<sub>2</sub>O 蒸気は、高純度水分発生器 (特注品; 純度99%以上) から露点計の温度に対応する飽和蒸気圧で密閉容器に封入される。

実験では、直流安定化電源 (100kV, 10mA) から正極性の直流電圧をロゴスキー電極に印加し、計測の換算電界強度  $E/P_{20}$  ( $E$ : 電界強度) が設定される。設定し

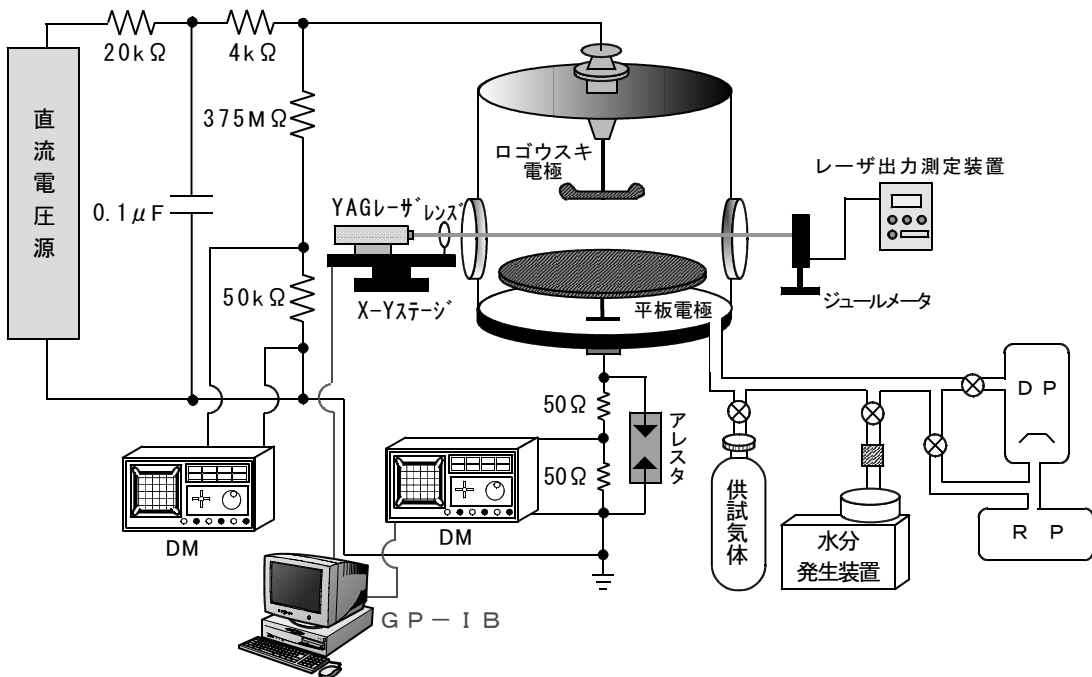


図1 実験装置

Fig.1 Schematic diagram of the experimental arrangement for the measurement of electron and ion swarm parameters.

た  $E/P_{20}$  の値はこの平等電界ギャップでの火花破壊電界以下である。次に、図1に示すように、放電容器の側面の石英ガラス窓を通してパルスレーザー光が放電ギャップに照射される。パルスレーザーは、YAG レーザ (New Wave Research, Tempest-10Hz) の3倍波 (波長 355 nm, 光子エネルギー 3.5eV, 出力 30mJ, ビーム直径 5mm) でパルス幅が3~5nsである。このレーザー光は、放電ギャップの軸上に焦点を持つように焦点距離600 mm の石英凸レンズで集光される。そのレーザー光の焦点は、X-Y ステージでレーザー照射ユニットを可動することで、陽極から陰極への任意の位置に精度約2マイクロメートルで調整可能である。

試料ガスへ高いパワー密度 ( $10^5 \sim 10^{10} \text{W/cm}^2$ ) のパルスレーザー光が照射された瞬間、紫外線レーザー光は多光子吸収電離<sup>(6)</sup>により  $10^8 \sim 10^{13} \text{cm}^{-3}$  の数密度<sup>(7)</sup> のプラズマを生成する。このプラズマ中の電子密度は、数十 ns の短時間に電子再結合や電子付着<sup>(6)</sup>により急速に減衰する。この時、プラズマ領域から電界のドリフト作用で引き出された電子スウォームは、陽極に向けて電離と付着作用を伴い移動する。これらの電子スウォームの挙動は外部の電気回路に電子電流を誘導する。短時間で急激に変化する電子電流波形は、放電ギャップと直列に接続された検出抵抗 50Ω を通して、デジタルメモリオシロスコープ DM (VP-5741A, 100MHz: 松下電器製又は9354 C, 500MHz: LeCroy) で観測される。また、電子電流波形が消滅後、極めて小さい値で、長時間にわたる正・負イオン電流波形が観測される。この小さい電流波形の観測は、2kΩ の大きな検出抵抗が用いられる。

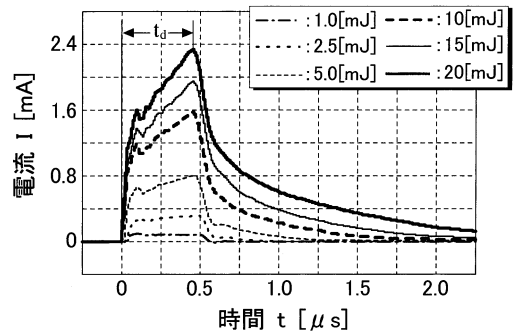
### 3. 解析結果と検討

#### 3.1 レーザ誘導された電子電流

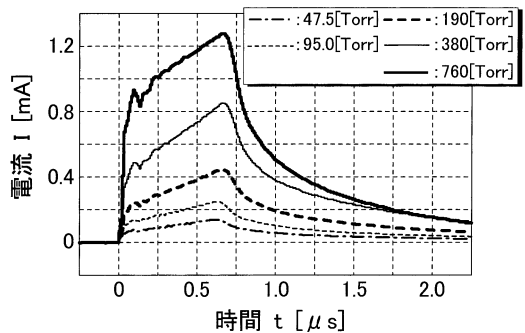
図2は、レーザー出力、ガス圧力そしてガスの種類に依存する電子電流波形で、同一の換算電界  $E/P_{20} = 9.47 \text{V/cm} \cdot \text{Torr}$  とギャップ長  $d = 2.5 \text{cm}$  で得られたものを示す。同図(a)は、 $\text{N}_2/\text{NO}(0.5\%)$  混合ガスで、レーザー出力を1 mJ から20mJ まで変化した場合の電子電流波形を与える。レーザー照射時  $t=0$  で急上昇する電流は、レーザー出力に依存した勾配で増加した後、約  $0.5 \mu\text{s}$  の時間以上で急激に低下する。図中に示した  $t_d$  は、パルスレーザー照射で生成された電離プラズマ中の電子スウォームが陽極へ走行するに要する時間に対応する。この  $t_d$  の実測値は、陽極とパルスレーザー照射位置との間の距離  $Z$  とすれば、電子のドリフト速度  $V_{de} = Z/t_d$  の式で関係づけ、電子ドリフト速度の評価に用いる。また、この電子スウォームの走行中の実効電離係数  $\alpha_{\text{eff}}/P_{20}$  は、電流の  $I(t) = I_0 \exp(\alpha_{\text{eff}} \cdot V_{de} \cdot t)$  式で、電流成長又は減衰の勾配から導出される。ここで、 $I_0$  はレーザー電離プラズマ

発生直後の電子電流である。

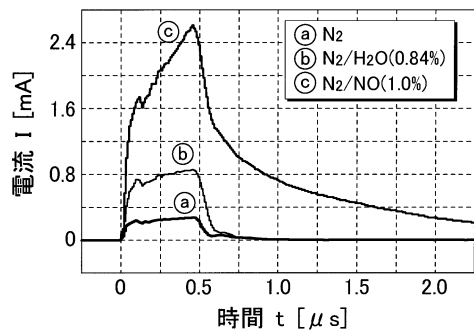
図2(a)において、ガスの種類、ガス圧力、換算電界強度が同一であるので、電流勾配は同一となると考えられるが、その勾配はレーザー出力に比例して増大する傾向にある。この理由は、レーザー出力が大きい場合、レーザー生成電離プラズマ密度が増加し、電子スウォーム自体の空間電荷電界が電流成長に影響を与えることによる。なお、このレーザー電離プラズマの大きさは、初期の急上昇



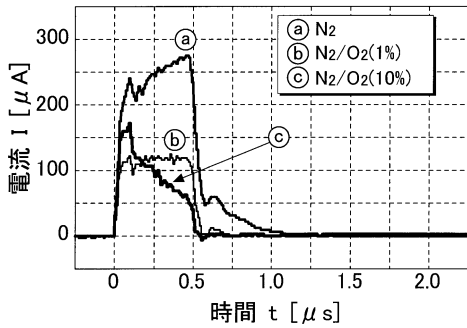
(a) レーザ出力による変化 ( $\text{N}_2/\text{NO}(0.5\%)$ )



(b) 気体圧力による変化 ( $\text{N}_2/\text{NO}(0.5\%)$ )



(c) ガスの種類による変化



(d)  $N_2/O_2$  混合ガスの  $O_2$  混合率による変化

図2 レーザ生成プラズマによって誘導された電子電流波形

Fig.2 Electron current forms induced by the laser produced plasma in the uniform electric field gaps for  $P_{20}=760\text{Torr}$  and  $E/P_{20}=9.47\text{V/cm}\cdot\text{Torr}$ .

する電流値  $I_0$  で推定される。

図 2 (b) は、異なるガス圧力の  $N_2/NO(0.5\%)$  混合ガスで、ギャップ長  $d=5.0\text{cm}$  の同一換算電界  $E/P_{20}=9.47\text{V/cm}\cdot\text{Torr}$  下で、約20mJ 出力のパルスレーザを照射して観測した電子電流波形である。この図から、多光子吸収電離は、ガス圧力が高いものほど活発で、 $I_0$  が大きいことを示す。なお、電子電流の勾配がガス圧力のに増加で上昇する理由は、電離周波数  $\nu_{\text{eff}}$  がガス圧力に比例するためである。

図 2 (c) と (d) は、 $E/P_{20}=9.47\text{V/cm}\cdot\text{Torr}$  が一定で、約20mJ 出力のパルスレーザを照射して実測した電子電流波形が  $N_2$  ガスに僅かな  $NO$ 、 $H_2O$  そして  $O_2$  ガスを混合した場合にどのような影響を与えるかを示したものである。約 1% の混合ガスを比較すると、 $H_2O$  と  $NO$  ガスは著しく電離プラズマ密度を高めるが、 $O_2$  ガスは逆に電離プラズマ密度を低下させる。特に、同図 (d) の  $N_2/O_2(10\%)$  混合ガスでは、陽極へ走行中の電子スウォームは強力な電子付着作用で、電子電流を時間的に低下する。しかしながら、 $O_2$  ガスの適切な混合はレーザ電離プラズマ密度を高める役割をもつ。

### 3.2 レーザ誘導されたイオン電流

図 3 は、 $P_{20}=760\text{Torr}$ 、 $E/P_{20}=16.6\text{V/cm}\cdot\text{Torr}$  の  $N_2/SF_6(50\%)$  混合ガスに約20mJ 出力のパルスレーザを照射した場合に観測された長時間領域のイオン電流波形である。同図の 2 種類の電流波形は、パルスレーザの照射位置が  $Z=0.5$  と  $1.0\text{cm}$  の異なる場合のものである。陽極へ向かう負イオンスウォームが陽極に到達するに要する時間  $t_{\text{dn}}$  と、陰極に向かう正イオンスウォームが陰極

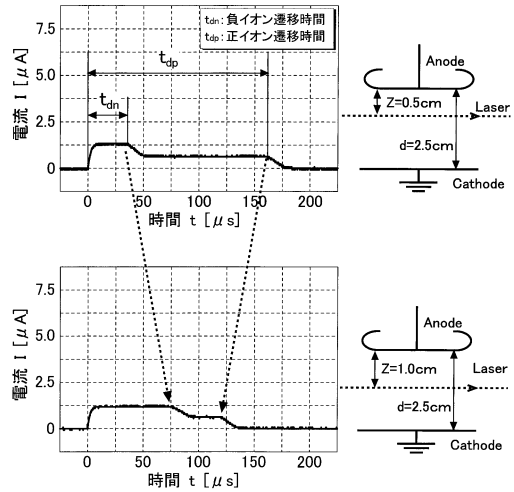


図3 レーザ生成プラズマによって誘導されたイオン電流波形

Fig.3 Ion current forms induced by the laser produced plasma in the uniform electric field gaps for  $N_2/SF_6(50\%)$ ,  $P_{20}=760\text{Torr}$  and  $E/P_{20}=16.6\text{V/cm}\cdot\text{Torr}$ .

に到達するに要する時間  $t_{\text{dp}}$  の実測は、各イオンのドリフト速度の評価とイオン種の同定に利用する。なお、 $N_2$  ガスや電氣的負性ガスを含まない混合ガスでは、負イオンの形成がないので正イオン電流のみとなる。

### 3.3 $N_2$ 混合ガスの電子ドリフト速度

図 4 は、約 1% の  $O_2$ 、 $NO$ 、そして  $H_2O$  ガスを  $N_2$  ガスに混合したガスでの電子ドリフト速度  $V_{\text{de}}$  の実測値である。各混合ガスと  $N_2$  ガスの電子ドリフト速度は、この図からほぼ同一であることが分かると共に、モンテカルロシミュレーションの数値解析結果<sup>(9), (10)</sup>とも一致する。しかしながら、大気圧の不等電界ギャップの正極

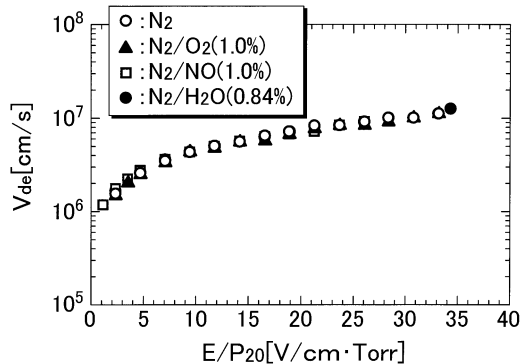


図4  $N_2$  混合ガスの電子ドリフト速度

Fig.4 The electron drift velocity as a function of  $E/P_{20}$  in various  $N_2$  mixtures at  $P_{20}=760\text{Torr}$ .

性直流放電特性<sup>(11)</sup>は、微量の O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O そして NO ガスを N<sub>2</sub> ガスに混合すると顕著な影響を受ける。

### 3.4 N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> 混合ガスと N<sub>2</sub>/NO 混合ガス実効電離係数

図5と6は、P<sub>20</sub>=760 Torr で N<sub>2</sub> ガスに O<sub>2</sub> ガスと NO ガスをそれぞれ系統的に混合し、実測した実効電離係数  $\alpha_{\text{eff}}/P_{20}$  である。これらの図で、 $\alpha_{\text{eff}}/P_{20}=0$  の軸を横切る E/P<sub>20</sub> の値は臨界換算電界（電子の電離と付着作用が等しく、電離成長が起こる境界値）と呼ばれる。

図5から明らかなように、O<sub>2</sub> ガスを5%程度以上混合すると付着作用が支配的となる広い E/P<sub>20</sub> の領域が出現する。この付着作用は、E/P<sub>20</sub> が約10V/cm・Torr を境に両側で増加する傾向をもつ。

小さい E/P<sub>20</sub> の領域では、E/P<sub>20</sub> が0に近づくほど電子の3体付着により付着作用が強化される。一方、大きい E/P<sub>20</sub> の領域では、E/P<sub>20</sub> の増加に伴って電子の解離付着により付着作用が強化されるが、電子の電離がより

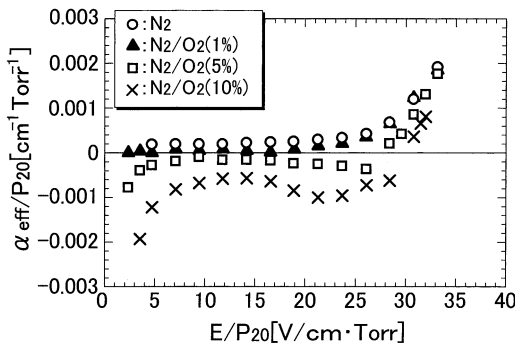


図5 N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> 混合ガスでの実効電離係数

Fig.5 The variation of the effective ionization coefficient as a function of E/P<sub>20</sub> for N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> mixtures at P<sub>20</sub>=760Torr.

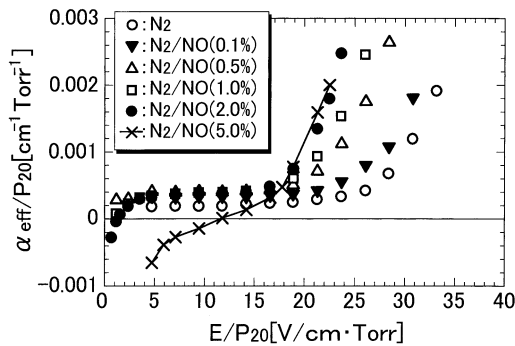


図6 N<sub>2</sub>/NO 混合ガスでの実効電離係数

Fig.6 The variation of the effective ionization coefficient as a function of E/P<sub>20</sub> for N<sub>2</sub>/NO mixtures at P<sub>20</sub>=760Torr.

強化されるので再び実効電離係数が上昇する。

これに対して、図6のNOガスを混合した場合、付着作用は大きくないことが分かる。特に、電離電圧が9.25eVと極めて低いNOガスの混合率を増加すると、より低いE/P<sub>20</sub>から実効電離係数が急上昇する。この時、NOガス混合率の増加による実効電離係数の変化は、レーザー電離プラズマ密度の増大による空間電荷電界効果も寄与すると考えられる。

### 3.5 各種ガスの正・負イオンのドリフト速度

図7と8は、電気絶縁ガスや燃焼ガスの主なガスについて、P<sub>20</sub>=760 Torrで実測された正イオンドリフト速度 V<sub>dp</sub> と負イオンドリフト速度 V<sub>dn</sub> を示す。ここで、室空気は約60%の相対湿度をもち、合成空気は N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> (21%) の混合ガスである。なお、これらの実測において、正・負イオンの種類は同定できない。

これらの図より、重い質量の分子で構成されるガスのイオンドリフト速度は小さいことを示す。また、SF<sub>6</sub> が

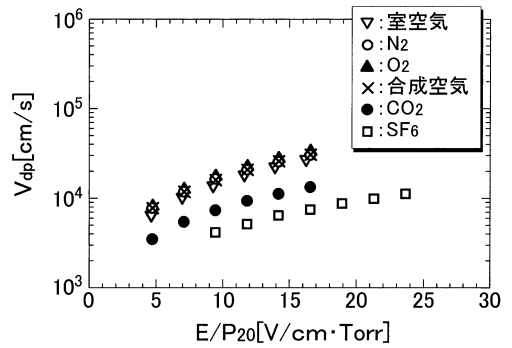


図7 各種ガスの正イオンドリフト速度 (P<sub>20</sub>=760Torr)

Fig.7 The positive ion velocity as a function of E/P<sub>20</sub> in various gases at P<sub>20</sub>=760Torr.

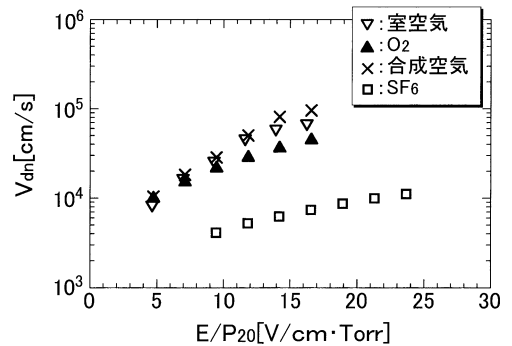


図8 各種ガスの負イオンドリフト速度 (P<sub>20</sub>=760Torr)

Fig.8 The negative ion velocity as a function of E/P<sub>20</sub> in various gases at P<sub>20</sub>=760Torr.

スは正・負イオンのドリフト速度はほぼ同一である。しかしながら、室空気と合成空気の負イオンドリフト速度は正イオンのものに比べて相当に大きい、この理由は、室空気と合成空気で計測された正イオン ( $N_2^+$ ,  $O_2^+$ ) と負イオン ( $O^-$ ,  $O_2^-$ ) の構成粒子種が相異なることが想定される。

**3.6  $N_2/SF_6$  混合ガスの正・負イオンのドリフト速度**

図9と10は、 $SF_6$  ガスを削減する最も可能性のある代替の電気絶縁ガスである  $N_2/SF_6$  混合ガスについて、実用ガス圧力  $P_{20}=760$  Torr で実測された正イオンドリフト速度と負イオンドリフト速度を示す。また、同図中には、 $SF_6$  単独ガスで以前に実測された Fleming らのデータ<sup>(12)</sup> を破線にて示す。

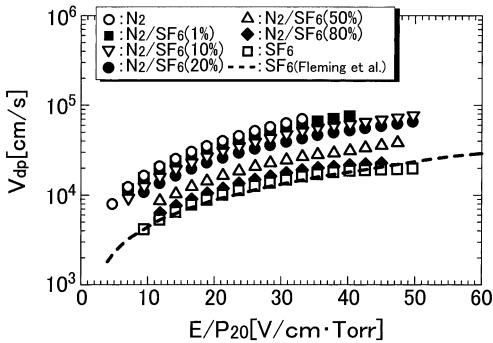


図9  $P_{20}=760$ Torr での  $N_2/SF_6$  混合ガスの正イオンドリフト速度

Fig.9 The positive ion velocity as a function of  $E/P_{20}$  for  $N_2/SF_6$  mixtures at  $P_{20}=760$ Torr and its comparison with values of Fleming (broken line) for  $SF_6$ .

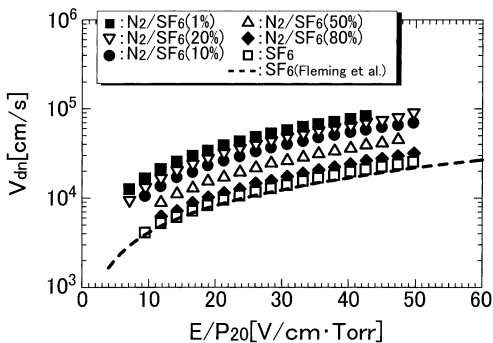


図10  $P_{20}=760$ Torr での  $N_2/SF_6$  混合ガスの負イオンドリフト速度

Fig.10 The negative ion velocity as a function of  $E/P_{20}$  for  $N_2/SF_6$  mixtures at  $P_{20}=760$ Torr and its comparison with values of Fleming (broken line) for  $SF_6$ .

これらの図から、 $N_2/SF_6$  混合ガスの正・負イオンのドリフト速度は、 $SF_6$  ガスの混合率の増加にほぼ反比例して減少する傾向をもつと共に、 $SF_6$  ガスの実測値は Fleming らの値とも一致する。このことは、混合ガス中のイオンの移動度を決定する Blanc の法則が、 $N_2/SF_6$  混合ガスにも適用可能であることを示唆する。さらに、実測した  $E/P_{20}$  の領域で、 $E/P_{20}$  が高くなると負イオンのドリフト速度が正イオンのものに比べて僅かに大きくなる。

**4. まとめ**

$SF_6$  ガスに替わる最適な電気絶縁ガスを調査する中で、電子とイオンのスウォームパラメータの決定は極めて重要である。特に、混合ガスに関しては、単独ガスとは異なる相乗効果が見られる。

実用的な高いガス圧力での電子の輸送係数は、電子の付着作用の強い電気絶縁ガスでは、電子スウォームの減衰が大きく、微弱な誘導電子電流となることから、その計測が困難である。

本研究では、パルスレーザー電離プラズマをギャップ中の広い範囲に生成して、可能な限り空間電荷電界効果を抑制した電子・イオンスウォーム計測を実現した。これらの実験結果から得られた主な成果が次のものである。

- (1) NO ガスの僅かな混合は、パルスレーザー電離プラズマで高密度の電子とイオン生成を可能とする。このことは、電子とイオンの輸送係数の計測を容易にする。
- (2) パルスレーザー電離プラズマ法は、電気的負性ガスでは、正・負イオンのドリフト速度の同時計測を可能とする。
- (3) 電気絶縁破壊電界以下の領域での電子の実効電離係数は、相当に低い換算電界まで、良い精度で実測可能である。
- (4) パルスレーザー誘導法は、多光子吸収電離を利用するため、高いガス圧力ほど有効である。

本研究で示したパルスレーザーの放電プラズマ制御は、電子・イオンスウォーム挙動の把握のみでなく、多くの放電応用分野に利用されることが期待される。

最後に、本研究の一部は、科学研究費、基盤研究(C) 課題番号14550283の補助によるもので、関係各位に感謝致します。

**参考文献**

(1) J. W. Gallagher, E. C. Beaty et al. "An Annotated Compilation and Appraisal of Electron Swarm Data in Electronegative Gases", J. Phys. Chem. Ref. Data, Vol.12, No.1, 109~152 (1983)

- (2) L. G. Christophorou and L. A. Pinnaduwa: "Basic Physics of Gaseous Dielectrics", IEEE Trans. Elect. Insulation, Vol.**25**, No.1, 55~74 (1990)
- (3) J. de Urquijo, C. A. Arriaga et al: "A Time-Resolved Study of Ionization, Electron Attachment and Positive-Ion Drift in Methane", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol.**32**, 41~45 (1999)
- (4) L. A. Pinnaduwa and L. G. Christophorou: "A Possible New Mechanism Involved in Non-Uniform Field Breakdown in Gaseous Dielectrics", Gaseous Dielectrics VII ed. by L. G. Christophorou and D. R. James, 123~131 (1994) Plenum Press, New York
- (5) N. Soulem, B. Held et al: "Analysis of the Laser - Produced Current Impulse below the Breakdown Threshold in a Homogeneous Field", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol.**29**, 1952~1962 (1996)
- (6) 大出力レーザーの電力技術への応用調査専門委員会編 (代表, 赤崎): 「大出力レーザーの開発状況と各種レーザーの電力技術への応用」, 電気学会技術報告, 第553号, 32~40 (1995)
- (7) 緒方・島田・他: 「レーザー誘雷に於ける高出力紫外光レーザーを用いた弱電離プラズマ密度計測と放電誘導実験」, 電気学会放電・高電圧合同研究会資料, ED-01-88, 11~15 (2001)
- (8) D. W. Koopman and K. A. Saum: "Formation and Guiding of High-Velocity Electrical Streamers by Laser-Induced Ionization", J. Appl. Phys., Vol.**44**, No.12, 5328~5336 (1973)
- (9) 為広・大庭・生澤・西嶋: 「N<sub>2</sub>ガス電子スウォームパラメータに与える微量H<sub>2</sub>O, NOガス効果」, 平成16年度電気関係学会九州支部大会講演集, 02-2P-10 (2004)
- (10) 竹内・中村: 「電子スウォーム法によるNO分子の電子衝突断面積」, 電気学会放電研究会資料, ED-02-95, 53~57 (2002)
- (11) 大庭・為広・生澤・西嶋: 「N<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>Oガス中における正極性直流放電特性」, 平成16年度電気関係学会九州支部大会講演集, 02-2P-14 (2004)
- (12) J. A. Fleming and J. A. Rees: "The Drift Velocities of Ions in Sulphur Hexafluoride", J. Phys. B: At. Mol. Phys. ser.2, Vol.**2**, 777~779 (1969)