

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 14日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22360114

研究課題名（和文） ナノコンポジット絶縁材料の電気物性の総合的・多角的検討

研究課題名（英文） Comprehensive and multifaceted study of the electrical properties of nano-composite insulating material

研究代表者

長尾 雅行 (NAGAO MASAYUKI)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30115612

研究成果の概要（和文）：LDPE/MgO ナノコンポジット材料の空間電荷形成と絶縁破壊を明らかにするために、直流前課電が絶縁破壊の強さ(Fb)と空間電荷分布、伝導電流に与える影響について調査した。LDPEの直流Fbは前課電電界の上昇と共にFbが減少した。これは、おそらく前課電中にパケット電荷が発生したことによりLDPEの伝導性が高くなったためである。一方で、LDPE/MgO ナノコンポジット材料の直流Fbは前課電電界の上昇と共にFbが増加した。これより、絶縁破壊に密接に関係する電極近傍のMgO ナノフィラーが電荷をトラップするために、空間電荷より伝導電流が制御されることを示唆された。

研究成果の概要（英文）：To understand the space charge formation and the breakdown of low-density polyethylene (LDPE) / nano-sized magnesium oxide (MgO) nanocomposite materials, the breakdown strength, the space charge distribution and conduction current influenced by DC prestress were investigated. DC breakdown strength (Fb) of LDPE decreased with increase of DC prestress. This is probably because the bulk of LDPE became more conductive condition by the generation of a packet like charge during the prestress. On the other hand, DC-Fb of LDPE/MgO nanocomposite increased with increase of DC pre-stress field. It was suggested that the conduction current controlled by the space charge near the electrodes due to charge trapping of MgO nanofiller closely related to the breakdown.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	5,300,000	1,590,000	6,890,000
2011年度	3,100,000	930,000	4,030,000
2012年度	1,700,000	510,000	2,210,000
年度			
年度			
総計	10,100,000	3,030,000	13,130,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電力工学・電力変換・電気機器

キーワード：LDPE、MgO、ナノコンポジット、直流前課電、空間電荷

1. 研究開始当初の背景

電力機器・電力ケーブルには保守性や絶縁性に優れる高分子絶縁材料が多用されている。近年の電力流通コスト低減の要求から、

電力機器の小型化が進められており、絶縁系に加わる設計ストレスは材料の本質的な破壊ストレスに近づいている。一方、高分子絶縁材料においては、各種の要求に応えるため、

素材の性質の補強またはその改質を行う目的で添加剤・充填剤が配合されることがある。近年、その粒径が数十 nm である充填剤を添加したナノコンポジット材料が誘電、電気絶縁の分野で多くの研究者から注目を集めている。これまで用いられてきたマイクロフィラーと比較した場合、ナノフィラーは同重量当たりの表面積が大きくなり、界面面積の増大により少量の添加で絶縁特性の向上が期待できる。

2. 研究の目的

本研究では、絶縁材料への適用を目指した MgO/LDPE ナノコンポジットの様々な絶縁特性を同一の研究機関において多方面から解明することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 直流絶縁破壊試験

電極系として、厚さ 10 mm のポリメタクリル酸メチル (PMMA) に直径 10 mm の孔を開け、その孔にフィルムを入れた後、両端を直径 10 mm の鉄球で挟みエポキシ樹脂でモールドした McKeown 電極系を用いた。電極系を 30℃ のシリコンオイル中に浸漬し、電極系の温度が定常状態になった後、図 1 に示すような直流前課電無し (同図 (a)) または有り (同図 (b)) の直流ランプ電界を印加し、絶縁破壊電圧を測定した。直流ランプ電界の上昇率は $0.50 \text{ kV}/(\text{mm}\cdot\text{s})$ (50 V/s) とし、前課電電界は $E_p=100$ または $300 \text{ kV}/\text{mm}$ とした。

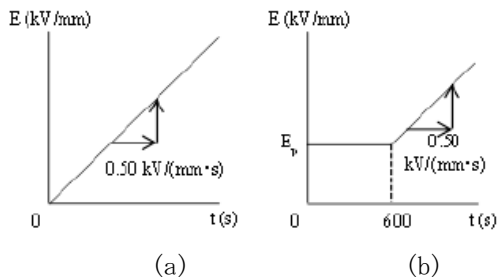


図 1 直流絶縁特性の測定における印加電界の時間変化

(2) 空間電荷特性

真空蒸着により、試料の両面に直径 10 mm の金電極を作製した。金電極の片面に半導電層と鉄球を設置し、それぞれの電極をエポキシ樹脂で固定した。この電極系に直流絶縁破壊試験とほぼ同様な電界 (図 1) を印加し、パルス静電応力法にて絶縁破壊に至るまでの空間電荷分布を 1 秒おきに測定した。前課電有りの場合の前課電電界は $E_p=200 \text{ kV}/\text{mm}$ とし、実験は 30°C で行った。

(3) 空間電荷と伝導電流の同時測定

図 2 に空間電荷と伝導電流の同時測定用の電極形状、図 3 に同時測定システムの概略図を示す。試料に上昇率 $0.50 \text{ kV}/(\text{mm}\cdot\text{s})$ の直流

ランプ電界を印加し、印加電界が $300 \text{ kV}/\text{mm}$ に至るまでの伝導電流と空間電荷分布を同時に測定した。また、 $200 \text{ kV}/\text{mm}$ の直流一定電界を印加し、電圧印加 10 分後までの伝導電流と空間電荷分布を同時に測定した。高電圧側に設置した抵抗 $100 \text{ k}\Omega$ の両端の電圧を測定し、抵抗値で割ることにより伝導電流値とした。空間電荷と伝導電流の測定間隔はともに 1 s であり、実験は 30°C で行った。

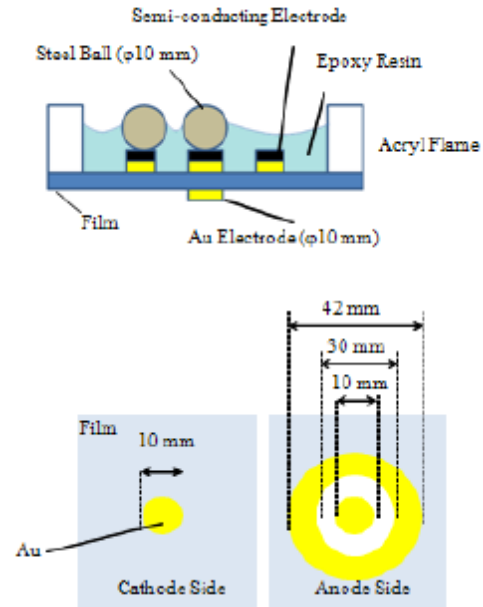


図 2 空間電荷と伝導電流の同時測定における電極形状

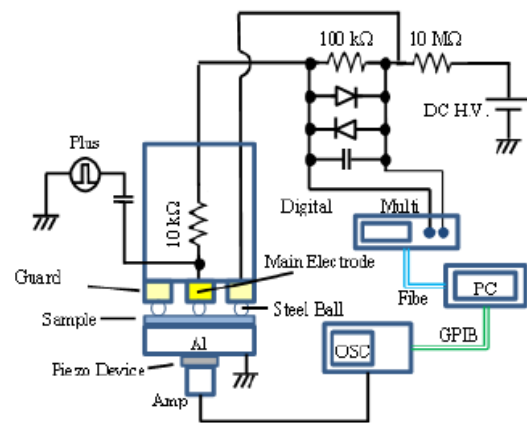


図 3 空間電荷・伝導電流同時測定システムの概略図

4. 研究成果

(1) 直流絶縁破壊試験

図 4 に前課電による直流絶縁破壊の強さ (直流 F_b) の変化を示す。同図中のプロットは、試料数 13~29 個の平均値を、エラーバー

はその標準偏差を示している。MgO 無添加試料においては前課電電界の上昇とともに直流 Fb が減少したが、MgO 添加試料においては前課電電界の上昇とともに直流 Fb が上昇した。

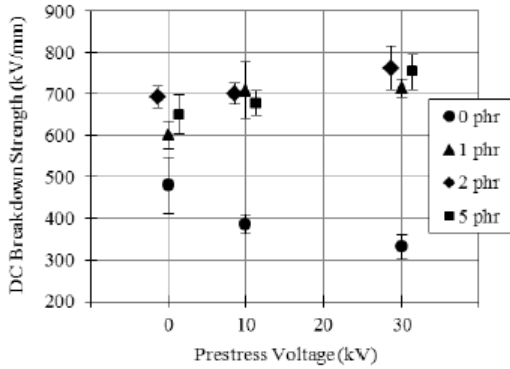
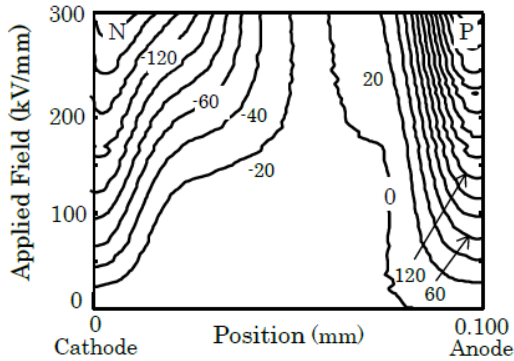


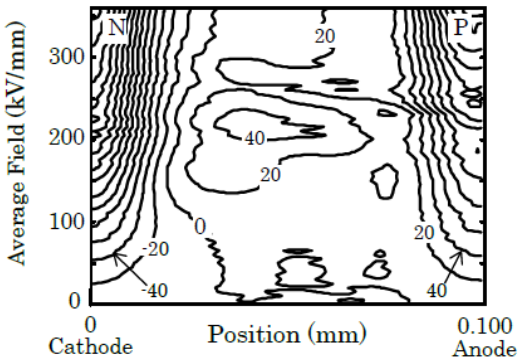
図4 LDPE/MgOナノコンポジットの直流絶縁破壊の強さに与える直流前課電の影響

(2) 空間電荷特性

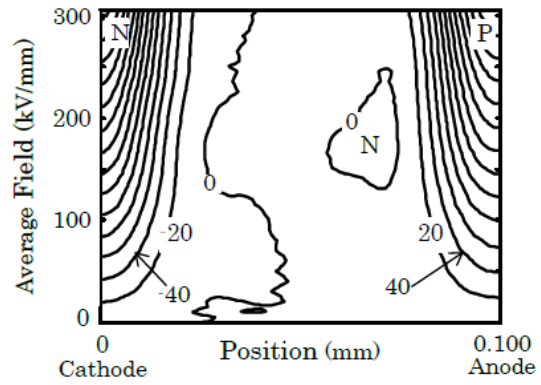
図5に直流前課電無しの場合の絶縁破壊に至るまでの空間電荷分布と電界増加量、図6に直流前課電有りの場合の絶縁破壊に至るまでの空間電荷分布と電界増加量を示す。図5の(a1)、(b1)および(c1)は各 MgO 添加量の空間電荷分布の等高線図を示しており、同図中の数字は電荷密度 (C/m³) を示している。また、電界増加量は試料内の局所最大電界から平均印加電界を引くことにより求めた。



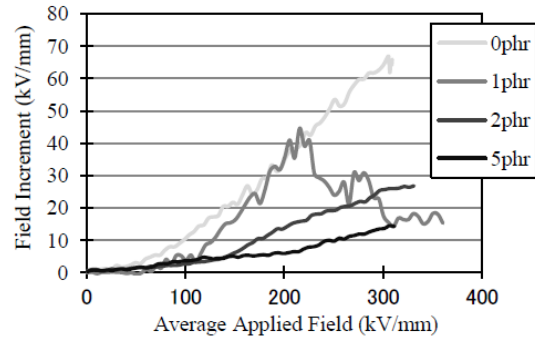
(a1) Contour plots of LDPE



(b1) Contour plots of 1 phr

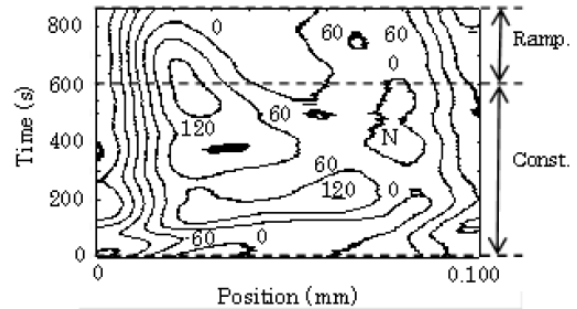


(c1) Contour plots of 5 phr

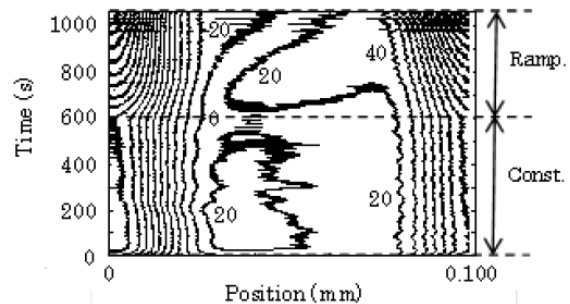


(d) Field increment

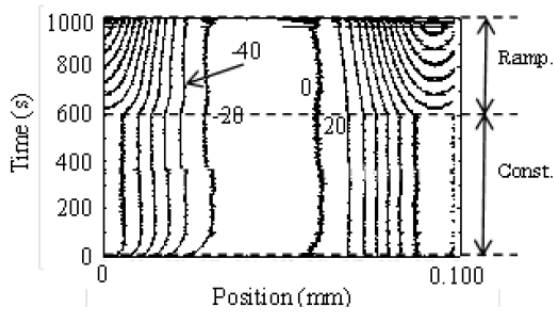
図5 直流前課電無しの場合の絶縁破壊に至るまでの空間電荷分布と電界増加量



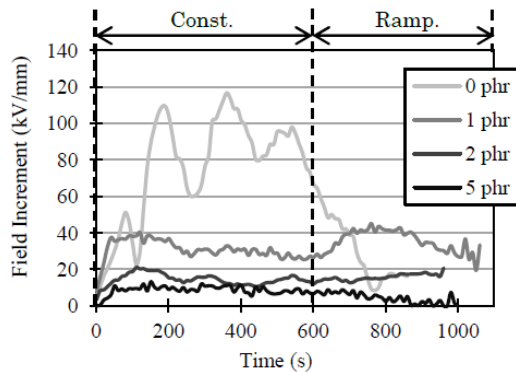
(a) Contour plots of LDPE



(b1) Contour plots of 1 phr



(c1) Contour plots of 5 phr



(d) Field increment

図6 直流前課電有りの場合の絶縁破壊に至るまでの空間電荷分布と電界増加量

同図(a1)はMgO無添加試料の直流前課電無しにおける結果である。平均電界約200kV/mmまでは負電荷の形成が優勢となったが、それ以上の平均電界においては両極近傍に大きな負電荷とわずかな正電荷の形成が確認された。また、同図(d)に示したように電界増加量は基本的に単調増加となったが、絶縁破壊直前においては電界増加量の短時間における増減が確認された。試料中の負電荷が陽極に対してヘテロ電荷として作用し、陽極より正電荷が注入されたため、電界増加量が増減したと考えられる。

同図(b1)は1 phr 試料の直流前課電無しにおける結果であるが、平均電界の上昇とともに形成された正電荷が増加した。しかし、平均電界が約200kV/mm以上では逆に正電荷の減少傾向が見られた。同図(d)の電界増加量を見ると、平均電界が約220 kV/mm以上において明らかに減少している。1 phr 試料においてはMgOナノフィラーが正電荷をトラップするため、200 kV/m以下の低電界下において試料内に正電荷が形成されたと考えられる。試料内に形成された正電荷が陰極に対してヘテロ電荷として作用し、陰極より負電荷が注入されるため、1phr 試料において高電界における正電荷の減少が見られるものと思われる。図5(c1)および(c2)は5phr 試料の直流

前課電無しにおける結果である。5 phr 試料の測定結果からは1 phr 試料で観測された高電界における正電荷の明らかな減少は確認されなかった。また、MgO ナノフィラー添加量の増加に伴って陽極近傍にトラップされるホモ空間電荷量が増加し、試料内の空間電荷量が減少したためと考えられる。

図6(a1)はMgO無添加試料の直流前課電有りにおける結果であるが、直流前課電中に空間電荷塊の発生およびその移動、いわゆるパケット電荷が確認された。印加電界が直流ランプ電界になった場合、試料内の空間電荷は徐々に減少した。MgO無添加試料の電界増加量は同図(d)のように直流前課電中のパケット電荷の存在によって電界増加が増減した後、直流ランプ電圧下においては単調に減少した。同図(a1)において観測されたパケット電荷の存在は、電荷が塊となって電極間を移動するため、試料内のあらゆる場所の局所電界を高くし、解離キャリア等を発生させやすくすると考えられる。また、申請者はパケット電荷が発生するような高電界を経験した後のエチレン酢酸ビニル共重合体フィルムの移動度は高電界を経験する前のそれに比べ増加することを報告している。したがって、直流前課電中に発生したパケット電荷により、絶縁体がよりconductiveな状態となったため、直流ランプ電圧下において電界増加量が減少したと考えられる。

1 phr 試料においては直流前課電中に正電荷形成が確認された。MgO無添加試料においては直流前課電中にパケット電荷が形成されたが、1 phr 試料においては空間電荷の形成が劇的に抑制された。直流ランプ電圧下においては直流前課電無しの場合と同様に形成された正電荷量が一旦増加し、更なる平均電界の増加に伴って正電荷量が減少した。これらの傾向は同図(d)に示した電界増加量によく表れている。このことから、正電荷の形成に伴う陰極からの負電荷の注入が示唆される。5 phr 試料においては空間電荷形成がほとんどなかったため、電界増加量もほとんど変化しなかったと考えられる。

(3) 空間電荷と伝導電流の同時測定

図7に同時測定における電界増加量を、図8に同時測定における伝導電流値を示す。なお、伝導電流値は測定値から電界の上昇に伴う変位電流分5 nAを差し引いたものである。

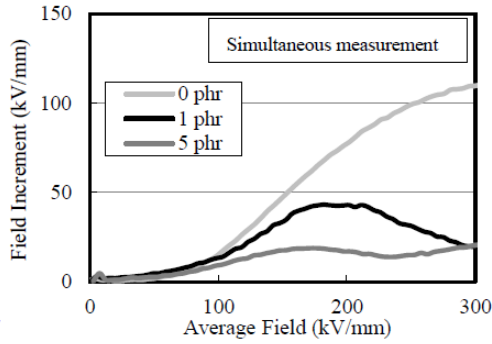


図7 ランプ電界下における電界増加量

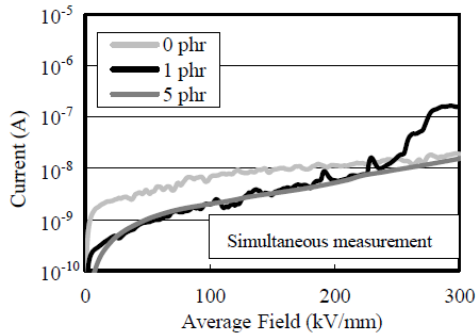


図8 ランプ電界下における伝導電流

図7および図8示したように MgO 無添加試料では平均電界の増加とともに負電荷が形成され、単調に電界増加量および伝導電流が増加した。1 phr 試料においては平均電界が 200 kV/mm までは平均電界の増加とともに電界増加量および伝導電流が増加したが、平均電界が約 250kV/mm 付近において電界増加量減少傾向になったとき、伝導電流が急上昇した。試料内に蓄積した正電荷が陰極電界を強調し、陰極よりキャリアが注入されたため、伝導電流が急上昇したと考えられる。また、電流急上昇後に伝導電流の電界による上昇率の低下が見られた。絶縁破壊に至るまでの伝導電流を測定した結果、図8の場合と同様に 1 phr 試料の伝導電流には急上昇する電界が存在し、その電界以上の電流の上昇率はその電界以下の電流の上昇率よりも小さくなることを報告しており、本実験結果はそれと定性的に傾向が一致する。電極近傍のホモ空間電荷が電極からのキャリア注入を妨げたためと考えられる。5 phr 試料においては、MgO 無添加または 1 phr 試料に比べ電界増加量も小さく、図8の伝導電流の値も単調に増加した。MgO ナノフィラー添加量の増加に伴って電極近傍にトラップされるホモ空間電荷量が増加し、試料内の空間電荷量が減少したためと考えられる。

図9に一定電界下における空間電荷と伝導電流の電界増加量を、図10に一定電界下における伝導電流を示す。

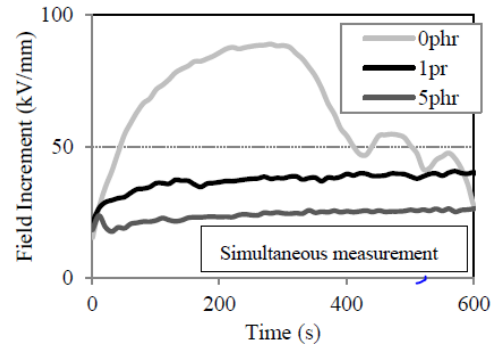


図9 一定電界下における電界増加量

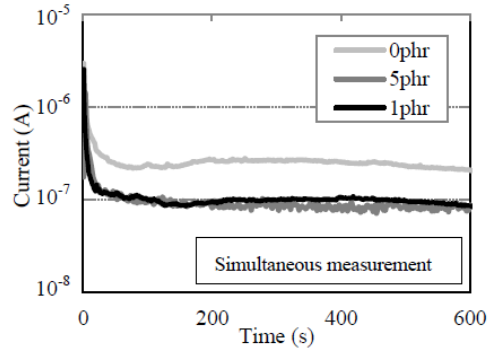


図10 一定電界下における伝導電流

無添加試料では試料内に大きな負電荷が形成され、電圧印加約 300s 後付近からは陽極か正電荷の注入が確認された。その結果、電界増加量は大きく増加し、電圧印加約 100s 後付近からは伝導電流が徐々に増加した。試料内の負電荷が陽極近傍電界を強調し、陽極からキャリアが注入されたため伝導電流値が上昇したと考えられる。1phr 試料においては、電圧印加とともに正電荷が形成されたため、電界増加量は徐々に大きくなった。MgO 無添加試料ほど顕著ではないが、電圧印加 150 s 付近から 1phr 試料の伝導電流値も若干上昇した。5phr 試料において若干の正電荷が形成されたが、電界増加量と伝導電流値に際だった変化は見られなかった。図8-図10に示したように試料内に形成される空間電荷の挙動が伝導電流を制御している可能性があることがわかった。

直流前課電中に形成された空間電荷が電荷注入を促進し、伝導電流が増加するため、直流前課電により無添加試料の直流 Fb が低下する。一方、MgO 添加試料においては電極近傍にトラップされたホモ空間電荷により、伝導電流が抑制されるため、直流前課電により MgO 添加試料の直流 Fb が上昇すると考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計0件)

[学会発表] (計7件)

- ① 今澤 宗一、村上 義信、長尾 雅行、関口 洋逸、C. C. Reddy、村田 義直、一定直流電界下における MgO/LDPE ナノコンポジットの寿命特性、平成 22 年電気学会 全国大会講演論文集 CD-ROM No. 2-032、2010
- ② 今澤 宗一、村上 義信、長尾 雅行、関口 洋逸、C. C. Reddy、村田 義直、一定直流電界下における MgO/LDPE ナノコンポジットの寿命特性(II)、平成 22 年電気学会 東海支部連合大会、講演論文集 CD-ROM No. A4-8、2010
- ③ 高村 規之、村上 義信、長尾 雅行、長時間分解能を有する空間電荷測定システムの開発、平成 22 年電気学会 東海支部連合大会、講演論文集 CD-ROM No. A4-5、2010
- ④ 今澤 宗一、村上 義信、長尾 雅行、関口 洋逸、C. C. Reddy、村田 義直、直流前課電が MgO/LDPE ナノコンポジットの直流絶縁破壊特性に及ぼす影響、平成 23 年電気学会 全国大、講演論文集 CD-ROM No. 2-077、2011
- ⑤ N. Takamura, Y. Murakami, M. Kurimoto, M. Nagao, Y. Inoue, C. C. Reddy, Y. Murata, Space Charge Formation and Conduction Current of LDPE/MgO Nanocomposite under DC Ramp Field, 2011 International Symposium on Electrical Insulating Materials CD-ROM MVP2-12, 2011
- ⑥ 高村 規之、草場 大地、村上 義信、栗本 宗明、長尾 雅行、井上 喜之、村田 義直、電圧履歴が LDPE/MgO ナノコンポジットの空間電荷形成に及ぼす影響、平成 24 年電気学会全国大会、2012、講演論文集 CD-ROM No. 2-078、2012
- ⑦ 高村 規之、村上 義信、栗本 宗明、長尾 雅行、井上 喜之、村田 F 義直、LDPE/MgO ナノコンポジットの直流絶縁破壊特性、誘電・絶縁研究会、DEI-12-068、2012

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

<http://dei.eee.tut.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長尾 雅行 (MASAYUKI NAGAO)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30115612

(2) 連携研究者

村上 義信 (YOSHINOBU MURAKAMI)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：10342495