

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 27 日現在

機関番号：84415

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26630337

研究課題名(和文) 高分子ナノコンポジットにおける電気トリー発生原理の解明と進展制御

研究課題名(英文) Mechanism of propagation and suppression of electrical tree in polymer nanocomposite

研究代表者

岩田 晋弥 (Iwata, Shinya)

地方独立行政法人大阪府立産業技術総合研究所・その他部局等・研究員

研究者番号：10642382

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：電気トリーは絶縁破壊の前駆現象である。エポキシ樹脂およびエポキシ樹脂/ナノシリカ粒子コンポジットに対し針電極を用いて電気トリーを発生させた。これらの試料に対し、高輝度放射光を利用したマイクロX線CTによって電気トリーの3次元構造解析を行った。その結果、エポキシ樹脂にはブランチタイプ、エポキシ樹脂/ナノシリカにはブッシュタイプの電気トリーが確認できた。撮影画像のフラクタル次元解析および描画シミュレーションによって、各タイプの電気トリーの分岐構造の特徴を明らかにした。さらに、ナノシリカコンポジットにおいては、湿度処理による絶縁破壊電圧の低下が軽減されることも明らかになった。

研究成果の概要(英文)：An electrical tree is a pre-breakdown phenomenon of insulating materials. To elucidate the suppression mechanism of an electrical tree by inorganic nano-fillers, the treeing test was conducted using a needle electrode for the epoxy resin and epoxy resin/nano-silica particle composite. Three-dimensional structural analysis of the electrical tree was performed on these samples by a micro-X-ray computed tomography (CT) using synchrotron radiation. As a result, a branch-type electrical tree and a bush-type electrical tree were found in the neat epoxy resin and the epoxy resin/nano-silica composite, respectively. The characteristics of structure of the branch-type and bush-type electrical tree were evaluated by the fractal dimension from the reconstructed CT images and dielectric breakdown model. Furthermore, it was revealed that the reduction in dielectric breakdown voltage due to humidity treatment is reduced in the epoxy resin/nano-silica composite.

研究分野：電気絶縁材料

キーワード：電気トリー 絶縁破壊 ナノコンポジット X線CT

1. 研究開始当初の背景

高分子材料は電力ケーブル、モーター、スイッチ等の電氣的な絶縁材料として広く利用されているが、近年の電気・電子機器の小型化、高電圧駆動化、使用環境の多様化などに伴い、更なる信頼性、安全性の向上が要求されている。

高電界の下で絶縁材料を使用し続けると絶縁破壊が生じる。発電・変電・送電設備などの電力インフラにおける絶縁破壊は、停電や火災に繋がるおそれがあり、社会への影響が極めて大きい。したがって、絶縁破壊現象の理解とそれに立脚した絶縁システムの設計が必要となる。

絶縁破壊の前駆現象として電気トリの発生が知られている。電気トリの長さや形状は、高分子材料の絶縁性を評価する上で重要な情報となる。しかし、これまでの研究の多くは、2次元的な観察に留まっており、内部の形状や3次元的な広がりを対象とした例は少ない。また、電気トリの進展抑制を目的として、高分子材料への無機フィラーの導入^[1-3]が注目されているが、その抑制原理は未解明な点が多い。

2. 研究の目的

上記のような背景をもとに、本研究の目的を以下のとおりとした。

(1) 高分子に発生した電気トリを $1\ \mu\text{m}$ オーダーの空間分解能で観察し、3次元的な形状評価を行う。

(2) 無機フィラーの進展抑制効果を電気トリ形状の観点から明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 試料

本研究では、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂を試料として用いた。エポキシ樹脂は電気絶縁材料として広く使用されており、今後もその重要性は増していくと考えられる。電気トリ進展の抑制を目的として、エポキシ樹脂に 1% (質量比) のナノシリカ粒子 (平均粒径 $100\ \text{nm}$) を添加した。これらの試料に対し電気トリ発生試験を行い、その形状を評価した。

(2) 電気トリ発生試験

交流高圧発生装置 (東京変圧器製 $20\ \text{kVA}$ $100\ \text{kV}$) を用いて、電気トリ発生試験を行った。図 1 に概略図を示す。上部の針電極 (先端径 $3\ \mu\text{m}$ の Ogura トリーイングニードル) から対抗電極に向かって電気トリが進展する。電極間距離は、 $2\ \text{mm}$ とした。未添加試料 (以下ニートエポキシ樹脂) に対しては、 $23\ \text{kV}$ を 100 分間、ナノシリカ添加エポキシ樹脂 (以下エポキシ樹脂/ナノシリカ) に対しては、 $27\ \text{kV}$ を 220 分間印加し、電気トリを発生させた。

(3) 電気トリの観察

一般的に、電気トリは光学顕微鏡を用いて 2次元的に観察、評価を行うが、内部の形

状や 3次元的な広がりを評価することは困難である。さらに、光を十分透過する試料でなくてはならない。マイクロームなどを使用して試料を切断し、その断面を観察する手法も提案されているが、試料を破壊してしまう上、十分な空間分解能を確保することは困難である。そこで、本研究では、X線 CT (X-ray Computed Tomography) を利用した観察に着目した。多くの工業用 X線 CT 撮影装置は、空間分解能が数 μm 以上のため、電気トリの観察が困難である。このため、本研究では、高輝度放射光施設 SPring-8 BL20XU のマイクロ X線 CT によって観察を行った。試料ステージの写真を図 2 に示す。試料から検出器までの距離は約 $10\ \text{mm}$ とし、空間分解能は $1.5\ \mu\text{m}$ を得た。その他の主な実験条件を表 1 に示す。検出器として、Beam Monitor AA50 および ORCA FLASH 4.0 を使用した。

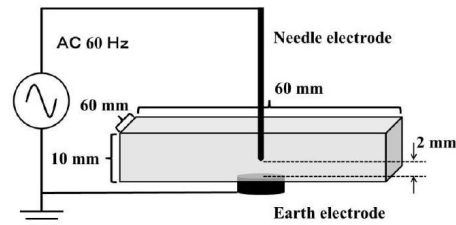


図 1: 電気トリ発生実験の模式図

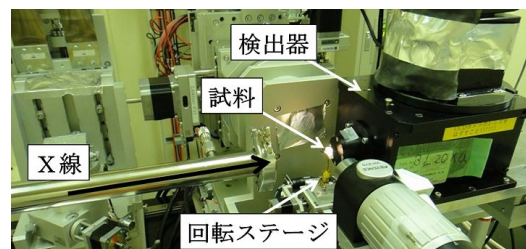


図 2: X線 CT 実験 (SPring-8 BL20XU)

表 1: X線 CT 実験条件

入射エネルギー	12.4 keV
露光時間	150 ms/frame
回転ピッチ	0.2 度
視野	1 mm

(4) 電気トリの形状評価と描画シミュレーション

電気トリは、自己相似形を有しているため、フラクタル次元によって形状が評価されてきた^[4,5]。本研究においても、X線 CT 実験より得られたボクセルデータを基に、フラクタル次元を導出した。

また、電気トリの進展は、決定論的モデルおよび確率論的モデルによる描画シミュレーションが行われてきた。決定論的モデルとして、Discharge-Avalanche モデル^[6]が提案されている。これは、固体内部のポイドで

の放電現象をもとに定式化されており、電気トリー進展特性時間が外部電界、イオン化エネルギー、平均自由行程、トリー長などから算出する。

一方、確率論的なモデルとして、DBM (Dielectric Breakdown Model) や DLA (Diffusion Limited Aggregation) モデルが提案されている^[6,7]。本研究では、DBM に基づく3次元的な描画シミュレーションを行い、実験より導出したフラクタル次元と比較した。

描画シミュレーションに用いた格子モデルを図3に示す。図中の太線が針電極から発生した最初の電気トリーを示し、その先端点*i*から枝状に進展する。点*i*における破壊候補点*j*は、図中の点1~5である。点*i*では電位を $\phi_i = 1$ とし、破壊候補点のポテンシャル ϕ_j をLaplace方程式にもとづいて算出する。ただし、針電極と電気トリーでは $\phi = 1$ 、対向電極とでは $\phi = 0$ としている。さらに、点*i*から点*j*への破壊確率 $P_{(i,j)}$ を以下の式(1)を用いて算出する。

$$P_{(i,j)} = \phi_j^\eta / \sum \phi_j^\eta \quad (1)$$

ここで、 η は形状パラメータであり、 $\eta = 1$ の場合はDBMとDLAは等価である。本研究では $\eta = 1$ とした。式(1)で求めた確率を重みとして、最終的な破壊点をランダムに決定し、枝の分岐を作る。この計算を繰り返すことによって、電気トリーが形成される。実験と比較するため、フィラーモデルを作成した。フィラーモデルでは、あらかじめ格子点に破壊進展しない点を配置した。

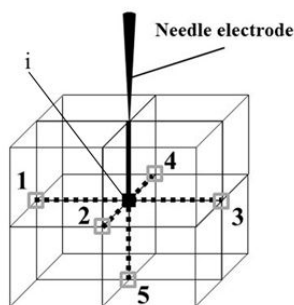


図3: DBMシミュレーションにおける格子モデル

(4) 湿度環境の影響

一般的に、多湿環境は絶縁劣化を促進させる。エポキシ樹脂/ナノシリカの耐湿性を調査するため、プレート状試料(厚さ1mm)に対し絶縁破壊実験を行った。ニートエポキシ樹脂およびエポキシ樹脂/ナノシリカを、40・90%RHの環境下に500時間静置し、その後、直ちに絶縁破壊実験を行った。実験には球($\phi=20$ mm)-円盤($\phi=25$ mm)電極を用い、昇圧速度1kV/秒の油中放電とした。

4. 研究成果

(1) 電気トリーの観察結果

図4にニートエポキシ樹脂に発生した電気トリーのX線CT像を示す。図4(a)は3次元表示したものであり、図4(b)は断層画像である。電気トリーの3次元的な進展を捉えることができ、断層画像よりトリー長や太さを評価することが可能となった。例えば、図4(b)より、太さが数 μm から10 μm 程度の枝が長さ約40 μm 程度にわたって進展しており、そこから、太さが5 μm 以下の枝が分岐している。

一方、図5に示すエポキシ樹脂/ナノシリカに発生した電気トリーは、太さが数 μm 程度の枝が多く、ニートエポキシと比較して枝の分岐構造が細かい。

一般的に、電気トリーは、ブランチタイプ、ブッシュタイプに大別される。枝の分岐構造の特徴より、ニートエポキシに発生した電気トリーはブランチタイプ、エポキシ樹脂/ナノシリカに発生した電気トリーはブッシュタイプと考えられる。エポキシ樹脂/ナノシリカでは、ニートエポキシと比較して、印加電圧が大きく印加時間が長いにも関わらず、電気トリー長は短い。これは、ナノシリカの添加による進展抑制効果と考えられる。

(2) 電気トリーの形状の評価

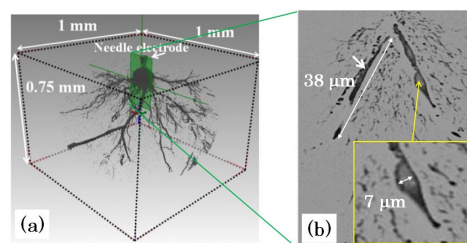


図4: ニートエポキシ樹脂に発生した電気トリーのX線CT撮影像。(a) 3次元表示 (b) 断層画像。

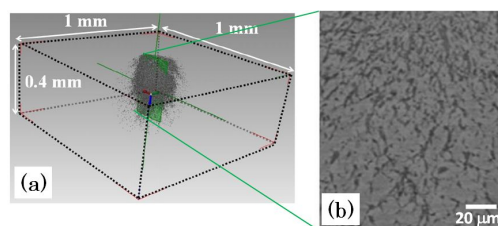


図5: エポキシ樹脂/ナノシリカに発生した電気トリーのX線CT撮影像。(a) 3次元表示 (b) 断層画像。

X線CT実験によって得られたボクセルデータをもとに、フラクタル次元を導出した。図6のように、電気トリーを含む一辺の長さ*l*の立方体内部の電気トリーの体積(*V*)を求め

$$d_f = \ln(V) / \ln(l) \quad (2)$$

で表される d_f をフラクタル次元と定義した。 I を変化させたときの $\ln V$ の変化を図 7 に示す。直線の傾きより d_f を算出できる。一方、DBM シミュレーションによって描画した電気トリーを図 8 に示す。同図より式(2)に従って d_f を求めると表 2 のようになった。実験、シミュレーションとも、フィラーの導入によって d_f が大きくなっている。これは、より密な電気トリーの発生を意味している。図 5 で示したように、X 線 CT 実験より、ブッシュタイプの電気トリーが観察されており、DBM シミュレーションによるモデル化が有用であると考えられる。これらの結果より、電気トリーはフィラーが添加されることにより、進展時の分岐回数が増し、トリー長が短くなっていると考えられる。

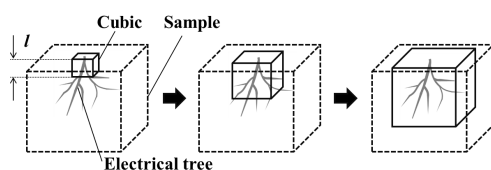


図 6：フラクタル次元の導出

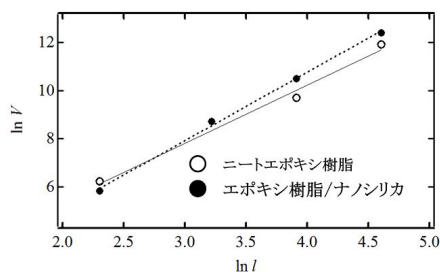


図 7： $\ln(V)$ vs $\ln(I)$

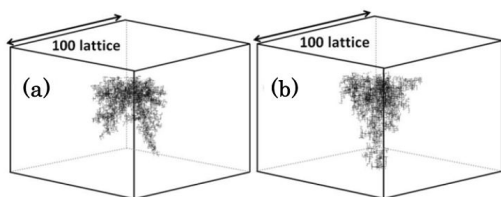


図 8：DBM シミュレーション結果。(a)ニートエポキシ樹脂モデル。エポキシ樹脂/ナノシリカモデル。

表 2：フラクタル次元の比較

	X 線 CT		DBM	
	エポキシ	フィラー	エポキシ	フィラー
d_f	2.4	2.8	2.4	2.6

(3) 湿度処理の効果

図 9 に絶縁破壊電圧の結果を示す。まず、湿度処理の無い場合を比較すると、エポキシ

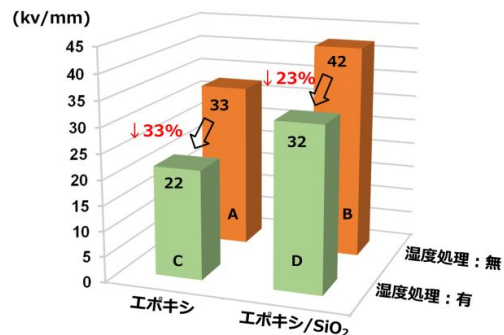


図 9：湿度処理による絶縁破壊電圧の変化

樹脂/ナノシリカがニートエポキシ樹脂よりも約 27% 絶縁破壊電圧が大きい。これは、上述した耐電気トリー性と傾向が一致し、短時間破壊においても強度が向上したことを示している。次に、湿度処理を施した場合は、両試料とも絶縁破壊電圧は低下している。一般的に、多湿環境は絶縁劣化を促進させることが知られており、本実験においても、その効果が確認された。この場合の絶縁破壊電圧は、エポキシ樹脂/ナノシリカがニートエポキシ樹脂よりも約 50% 大きい。湿度処理の影響が緩和されており、ナノシリカ添加の効果と考えられる。

<引用文献>

- [1] 電気学会技術報告, 第 1051 号 (2006)
- [2] 電気学会技術報告, 第 1148 号 (2009)
- [3] 先端複合ポリマーナノコンポジット誘電体の応用技術調査専門委員会 編 (2014) 『ナノテク材料～ポリマーナノコンポジット絶縁材料の世界～』 電気学会
- [4] L. Niemeyer, L. Pietronero and H.J. Wiesmann, Physical Review Letters, **52** (1984) 1033
- [5] K. Kudo, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, **5** (1998) 713
- [6] L.A. Dissado, S.J. Dodd, J.V. Champion, P.I. Williams and J.M. Alison, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, **4** (1997) 259
- [7] I.M. Irurzun, P. Bergero, V. Mola, M.C. Cordero, J.L. Vicente and E.E. Mola, Chaos, Solitons & Fractals, **13** (2002) 1333

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

S. Iwata, Influence of Humidity Treatment on Electrical Tree Propagation in Epoxy Resin, IEEE

Transactions on Dielectrics and
Electrical Insulation, Vol. 23 (2016)
pp.2556-2561. 査読有
DOI:10.1109/TDEI.2016.7736812
S. Iwata, Study on three-dimensional
structural analysis method for
electrical tree, Proceedings of 2015
IEEE 11th International Conference
on the Properties and Applications of
Dielectric Materials (ICPADM),
pp.236-239. 査読有
DOI:10.1109/ICPADM.2015.7295252
岩田晋弥, 電気トリーの3次元構造解析,
大阪府立産業技術総合研究所 所報,
No.29 (2015) pp.29-32. 査読有
<http://tri-osaka.jp/c/syoho/syohou29.html>

〔学会発表〕(計 4 件)

木谷亮太, 岩田晋弥, 喜多俊輔, 積層
造形材料の構造と電気絶縁性, 平成 28
年電気学会基礎・材料・共通部門大会,
2016 年 9 月 6 日, 九州工業大学(福岡
県・北九州市)

S. Iwata, Dielectric Properties of
Epoxy/Nano-SiO₂ Composite Material,
Global Conference on Applied Physics
and Mathematics, 25th July 2016,
Rome (Italy)

S. Iwata, Study on Three-Dimensional
Structural Analysis Method for
Electrical Tree, 2015 IEEE 11th
International Conference on the
Properties and Applications of
Dielectric Materials (ICPADM), 20th
July, Sydney (Australia)

岩田晋弥, 四宮徳章, 山東悠介, 伊藤
盛通, 竹内晃久, 鈴木芳生, X線CTに
よる電気トリーの構造解析, 平成 27 年
電気学会全国大会, 2015 年 3 月 26 日,
東京都市大学(東京都・世田谷区)

6. 研究組織

(1)研究代表者

岩田 晋弥 (Shinya Iwata)

大阪府立産業技術総合研究所・製品信頼性
科・研究員

研究者番号: 10642382