

平成 30 年 6 月 28 日現在

機関番号：17104

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14217

研究課題名(和文)革新的超機能性ナノコンポジット電気絶縁材料の創製

研究課題名(英文)Development of innovative superfunctional electrical insulating nanocomposite materials

研究代表者

小迫 雅裕 (KOZAKO, Masahiro)

九州工業大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：80350429

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：エポキシ・シリカナノコンポジットを作製し、同試料における絶縁油中のインパルス沿面放電耐電圧を評価した。その結果、無添加試料と比べると、1wt%のナノシリカ添加で沿面放電耐電圧が10%向上し、10wt%のナノシリカ添加では逆に10%低下した。この向上効果は、ナノ粒子の電子性キャリアトラップの影響が大きく関わっていると考えられる。

二次電子放出係数の測定結果から、ナノシリカ添加において二次電子放出係数がわずかに抑制されることがわかった。量子化学計算を実施し、ナノ粒子が深い電子トラップの働きを示すことを明確化できた。これらの結果が絶縁破壊電圧および沿面放電耐圧の向上メカニズムの一因であると推察した。

研究成果の概要(英文)：Epoxy/silica nanocomposites were prepared and its withstand voltages of impulse creeping discharge in insulating oil were evaluated. As a result, the withstand voltage increases by 10% with 1 wt% addition of nano-silica. On the other hand, it decreases by 10% with 10 wt% addition of nano-silica as compared with the specimen without nano-silica addition. An effect of this improvement might be related to an electronic carrier trap of nano-particles.

From results of the secondary electron emission measurement, it is found that the secondary electron emission coefficient is slightly suppressed in the nano-silica added specimen. From results of quantum chemistry calculations, it is found that nano-particles show a functionality as deep traps. These results may contribute to understand the improvement mechanism of the breakdown strength and the creeping discharge withstand voltage.

研究分野：電気絶縁材料，高電圧工学，放電

キーワード：ポリマーナノコンポジット 絶縁材料 ナノ粒子 沿面放電 二次電子放出係数 量子化学計算 インパルス放電 エポキシ樹脂

### 1. 研究開始当初の背景

既存の電力機器内部では、各絶縁箇所における絶縁能力(耐電圧)を安全に高レベルに確保するために、高電圧金属部を固体有機絶縁材料(ポリマー)等で被覆して、固体/気体あるいは固体/液体の界面での沿面放電発生を抑制している。現状の技術課題は、機器の更なる高電圧化・小型化・高効率化を図るために、沿面放電耐電圧を向上させることにある。この解決手段として、電界緩和あるいは沿面距離増加などがあるが、技術的に飽和しており革新的なブレイクスルーが求められている。

### 2. 研究の目的

本研究では、ポリマーナノコンポジット表面のナノレベルでの凹凸による物理的制御、および界面準位・トラップ準位などによる電子レベルでの制御による固体絶縁材料の表面改質により、ガス絶縁開閉装置(GIS)母線部の絶縁スペーサにおける沿面放電耐電圧向上の実験的実証と理論的アプローチを同時に行うことで、最終的には次世代電力機器の革新的な絶縁設計指針の提言を目指す。

### 3. 研究の方法

#### (1) ナノコンポジット創製

板状のナノコンポジット試料を以下の材料パラメータを考慮しながら独自創製する。  
 ○ポリマーマトリックス：エポキシ樹脂(ビスフェノールA型+酸無水物硬化剤)  
 ○ナノフィラー：いくつかの候補の中からこれまでの研究成果に基づき、 $\text{SiO}_2$ (シリカ)に傾注。添加率：0.1, 0.5, 1, 5, 10 Vol%など。粒径：20, 45, 100 nmなど。シランカップリング処理有・無。

#### (2) 沿面放電耐電圧実験

図1に試験回路と試験電極を示す。板状試料の上面に針電極と対向電極を配置し、金属チャンバー内の絶縁油(鉱油)中に浸漬させた。イメージインテンシファイア内蔵ディジ

タルカメラ(ICCD)、および2個の光電子増倍管(PMT)を用いてアクリル窓側から試料表面で発生した沿面放電発光を観測した。また、沿面放電発生時の放電電流を、接地電極に接続した50Ωの検出抵抗を介して測定した。正および負極性の標準雷インパルス電圧 $V_a(1.2/50 \mu\text{s})$ を印加間隔1分、20 kVから電圧上昇幅 $V_a$ を5 kVとした昇圧法により印加し、各印加電圧における沿面放電の発生の有無を発光と電流から取得した。1つの添加量に対して試料数は3個、1つの試料に対して測定回数は5回、計15回のインパルス印加に対して沿面放電が発生した回数により放電発生確率 $P_d$ を評価した。

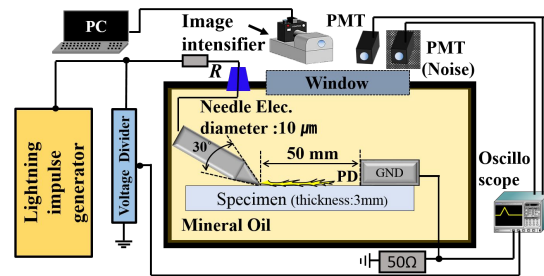


図1 沿面放電観測システム

#### (3) 二次電子放出係数測定

沿面放電発生に寄与すると思われる二次電子の放出量を高真空複合電子物性計測システムを用いて実測した。200eV~10keVという広範囲の一次電子の照射エネルギー範囲で二次電子を計測した。実験系の構築が優先されるが、得られた結果を量子化学計算および沿面放電特性などの結果と総合的に比較検討を試みた。

#### (4) 量子化学計算解析

ナノコンポジット試料の分子構造のモデル化を考慮した上で量子化学計算を実施した。量子化学計算にはGaussian09を用いた。これにより、ナノ粒子を添加したコンポジット材料の分子軌道を算出することにより、放電を進展させる二次電子を抑制するためのポテンシャル場が形成されるかの検討を試みた。

#### 4. 研究成果

##### (1) 沿面放電特性

図2に、ナノシリカ 1wt%および 10wt%添加試料およびニート試料における  $P_d$  の印加電圧  $V_a$  依存性を示す。同図より、いずれの試料においても正極性では 30 kV、負極性では 25 kV から放電が発生した。また、正極性において電圧を上昇させていくと 1 wt%、EP、10 wt% の順に放電発生抑制効果がみられた。また、 $P_d$  が 50%となる  $V_a$  を比較すると、EP に比べ 1 wt% では 1.1 倍高くなり、10 wt% では、0.9 倍と低くなった。一方、負極性では、添加率による  $P_d$  の差異は小さく、35 kV で全て 100%となった。

以上の結果から、正極性では試料表面におけるナノ粒子の電子性キャリアトラップ効果の影響が大きく関わっていると考えられる。1wt% 添加ではニート試料の比誘電率はほぼ変化しないが、10wt%ではわずかに増加する。(比誘電率,ニート:3.47,1 wt%:3.45,10 wt%:3.58) この誘電率の変化も特性に影響していると思われる。従って、今回の検討ではナノシリカフィラーの最適添加率は 1wt%前後となる。一方、負極性においては  $P_d$  に大きな差異がみられない。この結果は、放電開始において、試料表面の影響より高圧電極からの電子放出が支配的であると解釈できる。

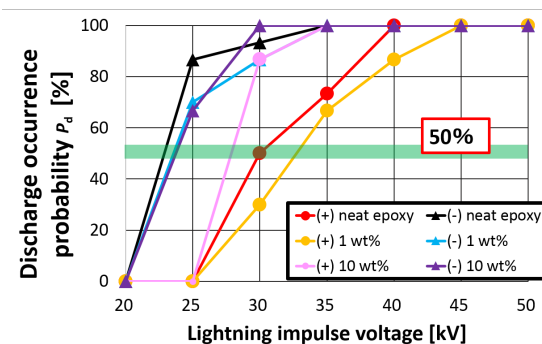


図2 各試料と電圧極性における沿面放電発生確率のインパルス電圧依存性

##### (2) 二次電子放出係数測定

真空ポンプシステムを調達する事により真空度を  $10^{-7}$ Pa 程度まで改善し S/N の向上を図り、試料の二次電子放出の評価が実施できた。ナノシリカ添加試料において、ニート試料と比べると、二次電子放出係数がわずかに抑制されている結果が得られた。この結果の解釈は今後の課題としたい。

##### (4) 量子化学計算解析

特にフラレン (C60) がモデル化しやすいため、フラレンとエポキシにおける量子化学計算を実施し、ディープトラップの存在を推定できた。このことが絶縁破壊電圧および沿面放電耐圧の向上メカニズムの一因であると推察した。

(5) 革新的絶縁設計指針： 特定のナノコンポジット化を施す、つまり、コンポジット材料のテーラーメイド化を施すことで、新しい絶縁設計の可能性が見い出せた。更なる基礎データ蓄積と適用先への検討を重ねることで、新しい次世代電力機器の革新的な絶縁設計指針の提唱が可能であると思われる。今後の課題が明確となったため、引き続き検討を継続したい。

#### 5. 主な発表論文等

##### 〔雑誌論文〕(計2件)

淵 裕樹, 中迫 椋太, 小迫 雅裕, 匹田 政幸, 亀井 伸人, “量子化学計算を用いた炭化水素系熱硬化性樹脂の誘電率推定の検討”, 電気学会論文誌 A, 査読有, Vol.137, No.11, pp.626-631, 2017

DOI: <https://doi.org/10.1541/ieejfms.137.626>  
K.Jang, T.Akahoshi, M.Kozako, M.Hikita, “Impulse Creepage Discharge Properties of Solid Coated Pressboard/Oil Composite Insulation with Rod-plane Electrode System”, 電気学会論文誌 A, 査読有, Vol.137, No.2, pp.113-118, 2017

DOI: <https://doi.org/10.1541/ieejfms.137.113>

##### 〔学会発表〕(計11件)

M.Kurachi, K.Jang, T.Akahoshi, M.Kozako, M.Hikita, “Dielectric Properties and Creepage Discharge of Epoxy/Silica Nanocomposite in Mineral

Oil”, 19th IEEE International Conference on Dielectric Liquids 2014 (ICDL2017), 査読有, 1196, 2017  
Y.Fuchi, R.Nakasako, Y.Okubo, M.Kozako, M.Hikita, N.Kamei, “Permittivity Estimation of Hydrocarbon-based Thermosetting Resin using Quantum Chemical Calculation”, 2017 International Symposium on Electrical Insulating Materials (ISEIM2017), 査読有, V2-11, pp.524-527, 2017  
S.Harada, M.Kozako, M.Hikita, T.Igarashi, H.Kaji, “Preparation of Fullerene/Epoxy Resin Composite with Fine Dispersion and Its Breakdown Strength”, 2017 International Symposium on Electrical Insulating Materials (ISEIM2017), 査読有, P2-17, pp.654-656, 2017  
原田翔太, 小迫雅裕, 匹田政幸, 五十嵐威史, 加治巨章, “フラーレン分散エポキシ複合材の絶縁破壊強度の基礎検討”, 平成 29 年電気学会全国大会, 査読無, 2-021, Vol.2, p.22, 2017  
澗 裕樹, 中迫椋太, 小迫雅裕, 匹田政幸, 亀井伸人, “量子化学計算を用いたジシクロペンタジエンの誘電率予測における単量体配置の影響”, 平成 29 年電気学会全国大会, 査読無, 2-029, Vol.2, p.32, 2017  
倉地将貴, チャンギョンフン, 赤星卓勇, 匹田政幸, 小迫雅裕, “エポキシシリカナノコンポジットの油中インパルス沿面放電開始電圧特性”, 平成 29 年電気学会全国大会, 査読無, 1-130, Vol.1, p.14, 2017  
澗 裕樹, 原田翔太, 小迫雅裕, 匹田政幸, 五十嵐威史, 加治巨章, “量子化学計算を用いたエポキシ/フラーレンナノコンポジットのトラップサイト推定の検討”, 平成 29 年度電気・情報関係学会九州支部連合大会, 査読無, 07-1A-06, p.62, 2017  
K.Jang, T.Akahoshi, M.Kozako, M.Hikita, “Nano SiO<sub>2</sub>/epoxy Coating Effect on Creepage Discharge Characteristics in Oil/Pressboard Composite Insulation System”, International Conference on Dielectrics (ICD2016), 査読有, 3a-5, pp.394-397, 2016  
K.Jang, T.Akahoshi, M.Kozako, M.Hikita, “Dependence of Silica Nano Filler added to Epoxy Resin on Creepage Discharge Properties in Mineral Oil”, 10th International Workshop on High Voltage Engineering and 2016 Japan-Korea Joint Symposium on Electrical Discharge and High Voltage

Engineering (IWHV2016 & JK2016), 査読無, ED-16-116/SP-16-045/HV-16-101, Vol.1, pp.73-76, 2016  
澗裕樹, 小迫雅裕, 匹田政幸, “量子化学計算を用いた炭化水素系熱硬化性樹脂の電気的特性予測の基礎検討”, 平成 28 年度電気・情報関係学会九州支部連合大会, 査読無, 14-1P-09, p.232, 2016  
澗裕樹, 中迫椋太, 小迫雅裕, 匹田政幸, 亀井伸人, “量子化学計算を用いた炭化水素系熱硬化性樹脂の誘電率予測の検討”, 平成 28 年電気学会 誘電・絶縁材料研究会, 査読無, DEI-16-101, 2016

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1 件)

名称: 沿面放電の発生を抑制する方法  
発明者: 末村尚彦, 石田智久, 小迫雅裕, 匹田政幸, 他 2 名  
権利者: 同上  
種類: 特許  
番号: 特願 2016-132011  
出願年月日: 2016 年 7 月 1 日  
国内外の別: 国内

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

[https://research02.jimu.kyutech.ac.jp/html/92\\_ja.html](https://research02.jimu.kyutech.ac.jp/html/92_ja.html)

<http://www.risys.gl.tcu.ac.jp/Main.php?action=01&type=detail&tchCd=5001739>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小迫雅裕 (KOZAKO, Masahiro)  
九州工業大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号: 80350429

(2) 研究分担者

三宅弘晃 (MIYAKE, Hiroaki)  
東京都市大学・工学部・准教授  
研究者番号: 60421864