

# 高分子絶縁材料における球晶分布状態とトリ－進展の関係

柳原昌輝・村井 豊\*

## Relation between distribution of spherulites and tree progress in high polymer insulation material

Masateru YANAGIWARA and Yutaka MURAI\*

(2003年11月28日受理)

The crystalline morphology of polypropylene (PP) is spherulites which are formed during cooling process from melted state. It is known that spherulites influence progress of electric treeing in PP. In this paper, we discussed the influence which the distribution of spherulites gives to the progress of electrical treeing in the specimen of PP. As the result, we understood when distribution density of spherulites is low, tree generating voltage is high and cannot breakdown easily, and when distribution density of spherulites is high, tree generating voltage is low and can breakdown easily.

### 1. 緒言

結晶性高分子材料であるポリプロピレンやポリエチレンは絶縁性能が高く、加工性、耐熱性に優れているので電力ケーブルなどの高電圧機器の絶縁に広く利用されている。これらの試料は、熔融状態から徐冷していく過程において球晶が形成され、絶縁破壊現象であるトリ－ング劣化現象に、その球晶は影響を与えるとされている。<sup>(1)(2)(3)</sup>

本研究では、ポリプロピレンの試料を恒温槽からの析出温度を変化させることにより球晶の分布状態が飽和、まばら、無しの異なる3種類の試料を作製した。作製した試料を球晶分布密度毎に分類し、印加する交流高電圧を0 [V] から200 [V/sec] の割合で昇圧することで、絶縁破壊を起こさせた。そして、発生したトリ－の発生電圧や絶縁破壊電圧を測定し、球晶の分布状態、結晶化度<sup>(4)(5)</sup>及び球晶分布密度との関係を検討した。

### 2. 実験方法

#### 2.1 試料の作製

10 [mm] × 10 [mm] のポリプロピレンフィルム (厚さ25 [μm]) を8枚重ね、その中心に電解

研磨法により研磨した直径50 [μm] の軟銅線を針電極として挿入し、それを24 [mm] × 24 [mm] のカバーガラスで挟んだものを試料とした。

その試料を重さ5 [kg] の鋼板でプレスしながら恒温槽に入れ、200 [°C] 程度まで昇温し、ポリプロピレンを熔融させ、その後1 [°C/min] の割合で徐冷し、90 [°C] から150 [°C] の範囲で析出、急冷し、球晶の成長を止めた。

球晶を生成させた試料に絶縁破壊試験を行うため、カバーガラス上の針電極の先端から1000 [μm] の位置に銀ペイントを塗布し、これを平板電極とした。平板電極の構成を図1に示す。

#### 2.2 球晶分布密度の測定

(1) 画像処理システム

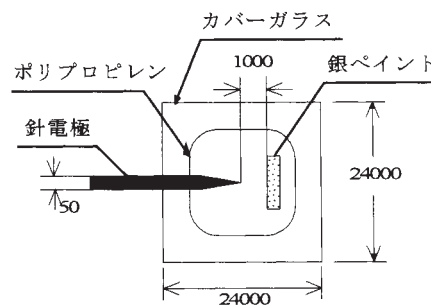


図1 平板電極の構成 (単位 [μm])

\* 秋田高専専攻科学生

絶縁破壊試験の前に、試料の画像を偏光顕微鏡とデジタルカメラを用いてパソコンに取り込み、その画像を処理することで球晶分布密度を測定した。画像処理システムの構成を図2に示す。

(2) 球晶分布密度

図3のように、針電極先端を中心から60 [μm]の位置とし、縦480ピクセル、横640ピクセル(1ピクセル=1.0 [μm])の範囲を抜き出し、その範囲内を占める球晶の面積の割合を球晶分布密度とした。図4に球晶分布状態の異なる3つの資料の画像を示す。それぞれの析出温度は(a) 100 [°C], (b) 117 [°C], (c) 145 [°C]であり、結晶化度は(a) 71.16 [%], (b) 62.28 [%], 58.74 [%], 球晶分布密度は(a) 100 [%], (b) 43.21 [%], (c) 0 [%], である。

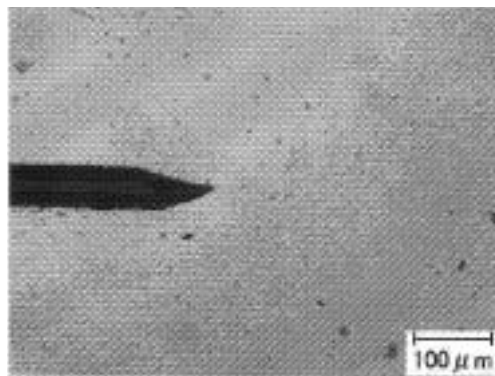
2.3 短時間絶縁破壊試験

図4の回路のように、試料の外部から絶縁破壊をする沿面放電を防ぐために試料をシリコン油に浸し、針電極・平板電極間に交流高電圧を印加する。印加電圧は0 [V] から200 [V/sec]の割合で絶縁破壊が起こるまで昇圧した。

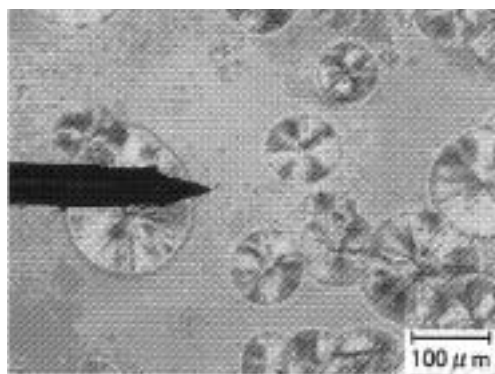
3. 球晶について

結晶性高分子材料であるポリプロピレンは、熔融状態から徐冷させると結晶化が進み球晶が発生する。この球晶は微小な異物等の核を中心に板状結晶が放射状に成長して球形になったものであり、この板状結晶はラメラと呼ばれる。

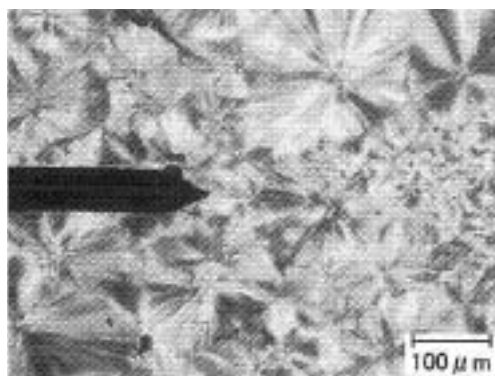
ラメラとラメラの間は非晶質であり、このラメラは分子鎖が100 [Å]程度の長さで板面に対して垂



(a) 球晶無し状態



(b) 球晶まばら状態



(c) 球晶飽和状態

図3 球晶分布状態の異なる試料の例

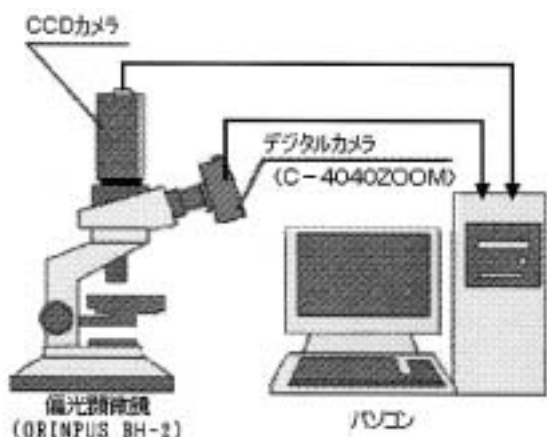


図2 画像処理システムの構成

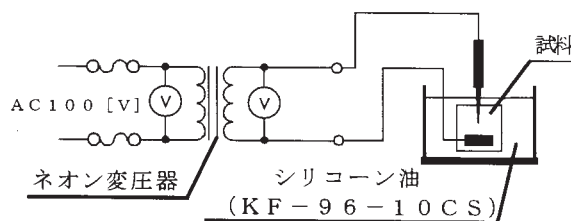


図4 短時間絶縁破壊試験回路

直方向に折りたたまれた構造となっている。球晶およびラメラの構造の概念図を図5に示す。

また球晶の大きさは平均120 [ $\mu\text{m}$ ]、最大260 [ $\mu\text{m}$ ]となった。

#### 4. 実験結果

##### 4.1 析出温度と平均球晶分布密度の関係

析出温度と平均球晶分布密度の関係を図6に示す。球晶分布密度は、析出温度が110 [ $^{\circ}\text{C}$ ]までは100 [%]であり、析出温度が110 [ $^{\circ}\text{C}$ ]から120 [ $^{\circ}\text{C}$ ]の範囲で急激に減少し、析出温度が120 [ $^{\circ}\text{C}$ ]を超過した後は0 [%]となった。これより、球晶分布密度は、析出温度が低ければ密であり、析出温度が高ければ疎となるということがわかった。ただし、平均球晶分布密度は各析出温度における球晶分布密度の平均を表す。

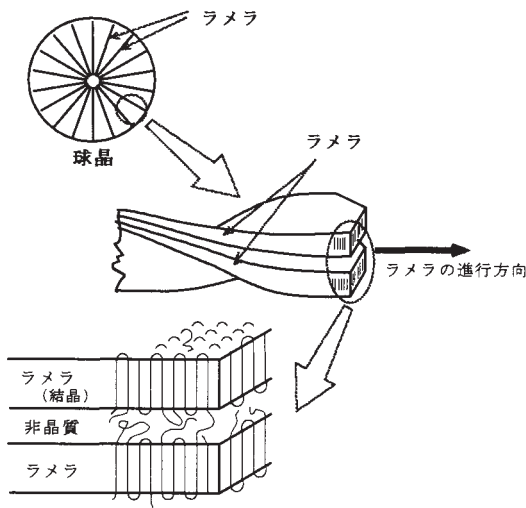


図5 球晶およびラメラの構造の概念図

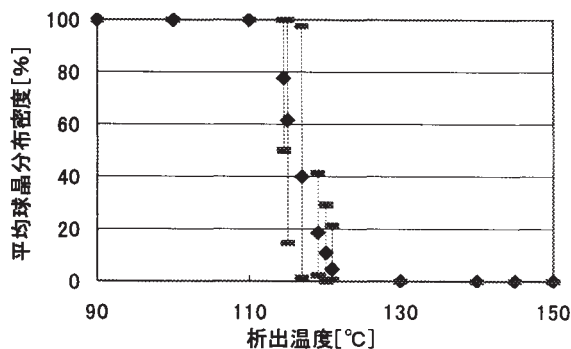


図6 析出温度と平均球晶分布密度の関係

##### 4.2 平均球晶分布密度と平均結晶化度との関係

平均球晶分布密度と平均結晶化度の関係を図7に示す。これより、球晶分布状態がまばらのときの球晶分布密度と結晶化度は比例の関係にあるということがわかった。ここで、平均結晶化度は各析出温度における結晶化度の平均を表したものである。

##### 4.3 球晶分布密度とトリー発生電圧の関係

球晶分布密度とトリー発生電圧の関係を図8に示す。トリー発生電圧は球晶分布密度が0 [%]のときに8.83 [kV]であるのに対し、球晶分布密度が100 [%]では7.73 [kV]と、球晶分布密度が100 [%] (密)のときよりも0 [%] (疎)であるときの方がトリー発生電圧は低い、つまりトリーが発生しにくいということがわかった。

また球晶分布密度が5 [%]未滿の試料を球晶無し状態、95 [%]を超える試料を球晶飽和状態、それ以外の試料を球晶まばら状態と球晶分布状態を定義した場合の球晶分布状態とトリー発生電圧の関係を図9に示す。トリー発生電圧は球晶分布状態が無し、まばら、飽和の順に徐々に低下していく傾向にあることがわかった。

図8で球晶分布密度が密になるのに対し、トリー

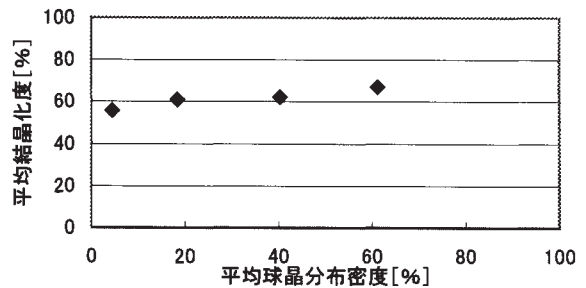


図7 平均球晶分布密度と平均結晶化度との関係

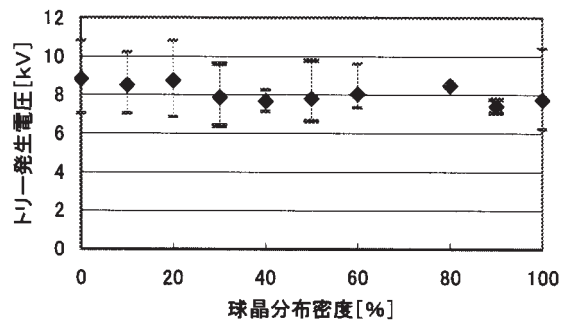


図8 球晶分布密度とトリー発生電圧の関係

発生電圧が高くなっている部分もあるが、これはトリ－が発生し始める針電極先端が球晶の内部にあるか外部にあるかでトリ－発生電圧が変化するためだと思われる。

#### 4.4 球晶分布密度と絶縁破壊電圧の関係

図10に球晶分布密度と絶縁破壊電圧の関係を示す。絶縁破壊電圧は球晶分布密度が0 [%] で9.97 [kV] なのに対し、球晶分布密度が100 [%] のときは8.54 [kV] と、球晶分布密度が100 [%] (密) のときよりも0 [%] (疎) であるときの方が絶縁破壊電圧は低い、つまり絶縁破壊が起こりにくいということがわかった。

またトリ－発生電圧の場合と同様に球晶分布密度

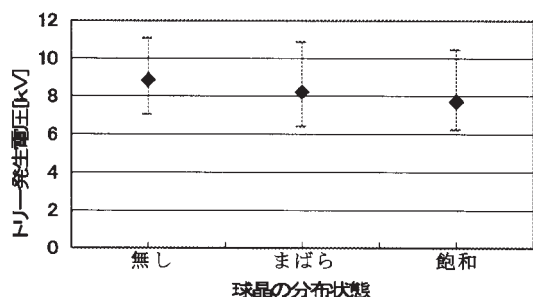


図9 球晶分布状態とトリ－発生電圧の関係

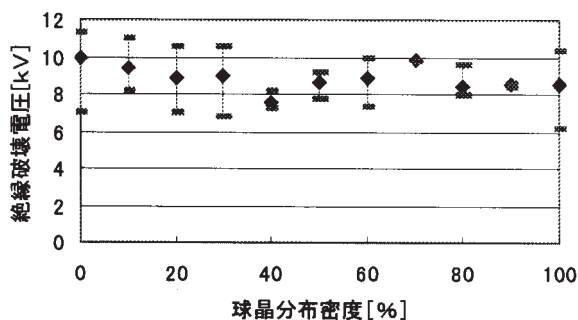


図10 球晶分布密度と絶縁破壊電圧の関係

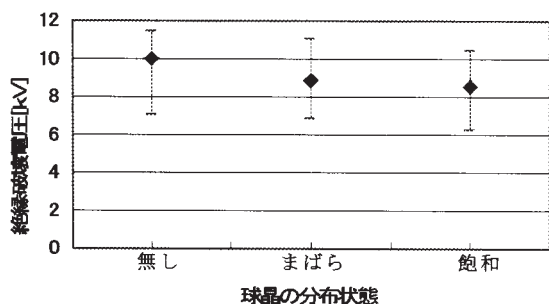


図11 球晶分布状態と絶縁破壊電圧の関係

が5 [%] 未満の試料を球晶無し状態、95 [%] を超える試料球晶飽和状態、それ以外の試料を球晶まばら状態と球晶分布状態を定義した場合の球晶分布状態と絶縁破壊電圧の関係を図11に示す。絶縁破壊電圧は球晶分布状態が無し、まばら、飽和の順に徐々に低下していく傾向にあることがわかった。

図10で球晶分布密度が密になるのに対し、絶縁破壊電圧が高くなっている部分もあるが、これもトリ－が発生し始める針電極先端が球晶の内部にあるか外部にあるかでトリ－発生電圧が変化するため、絶縁破壊電圧がそれに伴い多少変動するためだと思われる。

#### 5. 結 言

電力ケーブルをモデル化した高分子絶縁材料であるポリプロピレンの試料に、球晶を発生させ、その試料の画像をパソコンに取り込み、球晶分布状態および球晶分布密度を調べた。その後、短時間絶縁破壊試験を行いトリ－を発生、絶縁破壊を起こさせ、トリ－発生電圧、絶縁破壊電圧を測定し、球晶分布密度とトリ－発生電圧、絶縁破壊電圧の関係を調べた。その結果を要約する。

##### (1) 温度と平均球晶分布密度の関係

球晶分布密度は、析出温度が低ければ密であり、析出温度が高ければ疎となるということがわかった。

##### (2) 均球晶分布密度と平均結晶化度との関係

球晶分布状態がまばらのときの球晶分布密度と結晶化度は比例の関係にあるということがわかった。

##### (3) 球晶分布密度とトリ－発生電圧の関係

トリ－発生電圧は球晶分布密度が100 [%] (密) のときよりも0 [%] (疎) であるときの方が高く、球晶分布状態が無し、まばら、飽和の順に徐々に低下していく傾向にある、つまり球晶が無い場合が最もトリ－が発生しにくいということがわかった。

##### (4) 球晶分布密度と絶縁破壊電圧の関係

絶縁破壊電圧もトリ－発生電圧と同様に、球晶分布密度が100 [%] (密) のときよりも0 [%] (疎) であるときの方が高く、球晶分布状態が無し、まばら、飽和の順に徐々に低下していく傾向にある、つまり球晶が無い場合が最も絶縁破壊を起こしにくいということがわかった。

## 参考文献

- (1) 池端秀雄, 松田直也,  
「トリーイング劣化現象に対する結晶化度の影響」  
秋田高専卒業研究報告書, (2000)
- (2) 絶縁材料トリーイング専門委員会  
「有機絶縁材料のトリーイングについて—樹枝状放  
電劣化の調査と研究」電気学会技術報告, 第100号,  
(1971.9)
- (3) トリーイング劣化基礎過程調査専門委員会  
「高分子絶縁材料におけるトリーイング劣化の基礎  
過程」電気学会技術報告書, 第674号, (1998.4)
- (4) 荒井健一郎ほか  
「分かりやすい高分子化学」三共出版, pp.148-151,  
(1994.4)
- (5) 岩本令吉, 錦田晃一  
「赤外法による材料分析」講談社, pp.27, 204-205,  
214-215, (1998.8)