衝撃電圧によるアルミナ充てんエポキシ樹脂の絶縁破壊特性

正員 吉村 昇 (秋田大)
 正員 西田 真 (秋田大)
 正員 藤田 成隆 (八戸工大)
 正員 能登 文敏 (秋田大)
 非会員 田村 昌靖 (東芝ケミカル)

1. ま え が き

一般に、エポキシ樹脂を電気絶縁材料として使用する場合、樹脂単体での利用よりも種々の特性要求に合わせて無機系粉末粒子を混合して利用することが多い。無機系粉末粒子の混入は、機械的特性の改善と同時に材料費を低減できるという工業的利点を有しているためである。無機系粉末粒子を混入したエポキシ樹脂の機械的特性、誘電特性、耐トラッキング性、耐トリッキング性および $V-t$ 特性については検討が加えられているが^{(1)~(4)}、電気絶縁材料として最も基本的であり、かつ重要な電気絶縁特性の一つである絶縁破壊強度および絶縁破壊機構についての詳細な検討は極めて少ない⁽⁵⁾。

著者らは、さきに直流電圧印加時のアルミナ充てんエポキシ樹脂の絶縁破壊強度と絶縁破壊機構につき検討、考察を行なった⁽⁶⁾。その結果、20~100°C の温度範囲では空間電荷効果の介在に伴う電子的破壊過程、100~220°C では純熱破壊過程より説明した。またアルミナを充てんした場合には、20~100°C の温度範囲

で充てん剤粒子界面での電界の上昇に伴う破壊を、100~220°C では界面におけるイオン性空間電荷効果の作用による破壊として説明した。

本論文では、引き続き充てん剤粒子とエポキシ樹脂界面の効果を検討することを目的に、アルミナ充てんエポキシ樹脂に衝撃電圧を印加し、その際の絶縁破壊特性を調べた。更に、得られた結果に基づいて絶縁破壊機構について考察したので、その結果について報告する。

2. 試料および実験方法

〈2・1〉 試料 本研究で用いた試料の種類は前報⁽⁶⁾と同様ビスフェノール A 形エポキシ樹脂（密度；1.20，比誘電率 ϵ_{25} ；3.0）である。硬化条件は、(115°C で 15 時間 + 130°C で 10 時間) である。表 1 に充てん剤として用いた無水アルミナの諸特性を示す。

実験に用いた試料は充てん剤の部数（樹脂+硬化剤 100 部に対する量）別では 0, 5, 40, 100, 200, 250 部および 300 部の 7 種類である。7 種類の試料の部数を体積比 v_f (%) に換算した値を表 2 に示す。表中の粒子密度 n は、充てん剤の平均半径 $2.5\mu\text{m}$ とし、これが試料全体に平等に分布していると仮定した場合の

表 1 無水アルミナの諸特性

Table 1. Various properties of alumina particle.

種 類	無水アルミナ
比 重	3.95
比誘電率 ϵ_{25}	7.0
形 状	球形
平均直径 D	$\approx 5\mu\text{m}$
粒度分布	$D=1\sim 20\mu\text{m}$, 最大 $50\mu\text{m}$

Electrical Breakdown Characteristics of Alumina Filled Epoxy Resin Under Impulse Voltage. By Noboru Yoshimura, Member, Makoto Nishida, Member (Department of Electrical Engineering, Faculty of Mining, Akita University), Shigetaka Fujita, Member (Hachinohe Institute of Technology), Fumitoshi Noto, Member (Department of Electrical Engineering, Faculty of Mining, Akita University) & Masayasu Tamura, Non-member (Toshiba Chemical Co.).

吉村 昇：正員，秋田大学鉱山学部電気工学科
 西田 真：正員，秋田大学鉱山学部電気工学科
 藤田成隆：正員，八戸工業大学電気工学科
 能登文敏：正員，秋田大学鉱山学部電気工学科
 田村昌靖：非会員，東芝ケミカル株式会社入舟工場

表 2 実験に用いた各部数の体積比、
粒子密度、平均粒子間隔

Table 2. Ratio of volume of filler, filler density and average distance of filler for epoxy resin with various alumina parts.

部数	0	5	40	100	200	250	300
体積比 v_f (%)	0	1.5	10.8	23.3	37.8	43.2	47.7
粒子密度 $n \times 10^3$ (個/ $10^6 \mu\text{m}^3$)	0	3.57	25.4	54.6	88.8	101.0	111.7
平均粒子間隔 $\bar{d}$ (μm)*	0	16.2	8.4	6.5	5.6	5.3	5.2

* 粒子の中心間距離

$100 \times 100 \times 100 \mu\text{m}^3$ に含まれる平均粒子数である。また平均粒子間隔 $\bar{d}$ は、電極間に平均半径 $2.5 \mu\text{m}$ の粒子が並んだ場合の粒子間の距離を示す。

試料形状を図 1 に示す。厚さ 2 mm の注型板材から図 2 に示す過程を経て作成した。試料は歯科医用研磨器 (# 100 のサンドペーパーと同一程度) を用いて研磨し、所定の厚さとした。研磨の際に生じた切粉を洗い落とすため、超音波洗浄を 1 時間行なった後、恒温そうを用いて 60°C 、2 時間の乾燥処理を行なった。電極は半球-平板とし、両面に導電性銀ペイントをハケを用いて塗布した。電極間の距離は $150 \mu\text{m}$ である。なお、厚さ依存性の実験においては $50, 100 \mu\text{m}$ 厚さの試料も用いた。試料厚さの測定にはマイクロメ

図 1 試料形状

Fig. 1. Shape of sample.

図 2 試料作成過程

Fig. 2. Preparation process of sample.

ータを用いた。

〈2・2〉 実験方法 衝撃電圧は波頭長 (t_f) および波尾長 (t_r) 可変の衝撃電圧発生装置を用いた⁽⁷⁾。本研究で用いた衝撃電圧波形 (t_f/t_r) は、主として $7/100 \mu\text{s}$ であり、そのほかに予備的検討においては $2/35, 15/190, 30/400, 140/1,800, 250/3,700$ および $700/6,500 \mu\text{s}$ の合計 7 種類の波形を用いた。

20°C での実験は、 10^{-2} Torr 下で 1 時間脱気処理を行なった高圧トランス油を、 $60 \sim 220^\circ\text{C}$ の温度範囲における実験は、トランス油と同一の条件下で脱気処理したシリコン油 (50 cs) を周囲媒質として用いた。絶縁破壊強度 E_{BD} は (破壊電圧 V_{BD})/(試料厚さ d) として求め、5~12 回実験の相加平均値とした。

3. 電圧印加方法および波形を決定するための予備的検討

衝撃電圧による破壊試験における電圧印加方法は、従来予想破壊電圧の少し手前から電圧を印加するステップアップ方式が多く用いられている⁽⁸⁾。しかし、ステップアップ方式で実験を進めると、図 3 に示すように絶縁破壊電圧がその前に印加した電圧の最大値より低い値になることが多い。これは前課電により試料に何らかの形で劣化が伴っていることを示唆し、真の破壊強度が得られにくいことを意味する。

そこで図 4 に示すように、予想破壊電圧より $10 \sim 10$ 数 kV 高い波高値を有する衝撃電圧を印加する、いわゆる過電圧方式を用いた予備実験を試みた。実験に用いた試料形状は図 1 に示すものであり、250 部充てんのものである。試料厚さは $d=150 \mu\text{m}$ である。実験方法は〈2・2〉節と同様であり、試験温度は 20°C である。

図 5 は種々の衝撃電圧波形による絶縁破壊強度の立上り依存性を、ステップアップ方式と過電圧方式の間で比較したものである。ステップアップ方式は初期印加電圧値を 20 kV とし、以後 2 kV ずつのステップア

図 3 ステップアップ方式による電圧印加

Fig. 3. Applied voltage by means of step up method.

図 4 過電圧方式による電圧印加
Fig. 4. Applied voltage by means of over-voltage method.

図 5 ステップアップ方式と過電圧方式による絶縁破壊強度の比較

Fig. 5. Comparison of breakdown strength between step up and over-voltage methods.

図 6 絶縁破壊強度の温度依存性

Fig. 6. Temperature dependence of breakdown strength.

ップで破壊電圧を求めた。一方、過電圧方式ではピーク値 $V_p=50$ kV の衝撃電圧値を用いた。

ステップアップ方式と過電圧方式の比較をすると、 $t_f=7\mu\text{s}$ 以下の短い立入り時間では過電圧方式の E_{BD} が高くなるが、 $t_f=7\mu\text{s}$ 以上の長い立入り時間では顕著な差異は認められない。以上の結果より、以後の実験では前課電の影響を除去できる過電圧方式を、また印加電圧波形は E_{BD} が最低値を示す $t_f=7\mu\text{s}$ を採用した。

なお図 5 の結果によると、 E_{BD} は $t_f=7\mu\text{s}$ および $140\mu\text{s}$ を境にして三つの領域に分けることができる。すなわち、 t_f の増加と共に E_{BD} が減少する領域 I と

上昇する領域 II、更に t_f の増加と共に直流破壊電圧に向けて E_{BD} が再び減少する領域 III である。領域 I の傾向を示す原因としては、破壊の時間遅れが推定され⁽⁸⁾、領域 II および領域 III については図 5 と同様の結果となる報告もあり⁽⁹⁾、空間電荷効果と関連していることが推定されるが、これらの点についてはここでは深く触れないことにし、別報にて詳述する予定である。

4. 実験結果

〈4.1〉 絶縁破壊強度 (E_{BD}) の温度依存性

図 6 に充てん部数をパラメータにした E_{BD} の温度

図 7 絶縁破壊した際の電圧波形

Fig. 7. Voltage waveforms in the occurrence of breakdown.

依存性を示す。なお参考のため、さきに報告した 0, 250 部充てんエポキシ樹脂の直流破壊強度の結果⁽⁶⁾を併せて示す。過電圧条件は 0, 5 部においては $V_p=80$ kV, 40 部においては $V_p=70$ kV, 250 部においては $V_p=50$ kV である。試料厚さ d は $150\ \mu\text{m}$ である。

衝撃電圧による E_{BD} の温度依存性は、各部数とも 20°C から 100°C (無充てん), 115°C (5 部充てん), 145°C (40 部充てん), $200\sim 220^\circ\text{C}$ (250 部充てん) の温度 T_0 にかけて $\partial E_{BD}/\partial T \approx 0$ の傾向を持つ領域 I と、各々の充てん部数により決まる T_0 から 220°C にかけて $\partial E_{BD}/\partial T < 0$ の傾向を持つ領域 II に分けることができる。領域 II における E_{BD} の低下の割合は、直流電圧の場合に比較して小さい。 E_{BD} に及ぼす充てん部数の影響は、部数が多くなるほど E_{BD} は全体的に低下する。

0, 5 部試料の絶縁破壊した際の電圧波形を図 7 にそれぞれ示す。

〈4.2〉 絶縁破壊強度 (E_{BD}) に及ぼす充てん量の効果 図 8 に試料温度をパラメータにした場合の E_{BD} と充てん剤の体積比 v_f の関係を示す。過電圧条件は 0, 5 部において $V_p=80$ kV, 40, 100 部において $V_p=70$ kV, 200, 250, 300 部においては $V_p=50$ kV である。試料厚さ d は $150\ \mu\text{m}$ で、衝撃電圧波形は $7/100\ \mu\text{s}$ である。実験結果を要約すると次のようになる。

(1) いずれの温度とも、 v_f が $0\sim 23.3\%$ (充てん部数 100 部) にかけて $\partial E_{BD}/\partial v_f < 0$ の傾向を持

図 8 絶縁破壊強度における充てん剤体積比の効果

Fig. 8. Effect of volume of filler upon breakdown strength.

図 9 無充てんエポキシ樹脂の絶縁破壊強度の厚さ依存性

Fig. 9. Thickness dependence of epoxy resin without filler upon breakdown strength.

つ。一方、 v_f が 23.3% (100 部) $\sim 47.7\%$ (300 部) にかけては、ほぼ $\partial E_{BD}/\partial v_f \approx 0$ となる。

(2) 温度の上昇に伴い v_f が $0\sim 23.3\%$ (100 部) の範囲における $\partial E_{BD}/\partial v_f < 0$ の割合は低下する。

〈4.3〉 絶縁破壊強度 (E_{BD}) における厚さ依存性

図 9 に無充てんエポキシ樹脂の試料温度をパラメータにした衝撃電圧 ($7/100\ \mu\text{s}$) による E_{BD} の厚さ依存性を示す。参考として直流電圧による結果も併せて示す。20, 160°C とも $\partial E_{BD}/\partial d < 0$ となり、直流電圧の場合とは異なる傾向を示す。

図 10 は 250 部充てんエポキシ樹脂の試料温度をパラメータにした E_{BD} の厚さ依存性である。 E_{BD} の厚さ効果は 20, 160°C とも無充てんエポキシ樹脂の場合と同様 $\partial E_{BD}/\partial d < 0$ となる。また 20°C と 160°C での E_{BD} はほぼ等しい。

図 10 250 部充てんエポキシ樹脂の絶縁破壊強度の厚さ依存性

Fig. 10. Thickness dependence of epoxy resin with 250 parts filler upon breakdown strength.

5. 実験結果の検討

〈5・1〉 領域 I ($20 \sim T_0(^{\circ}\text{C})$) における絶縁破壊機構

この領域での絶縁破壊強度 E_{BD} に関する諸特性を整理すると、

- (i) $\partial E_{BD} / \partial T \approx 0$
- (ii) $\partial E_{BD} / \partial d < 0$
- (iii) $\partial E_{BD} / \partial v_f < 0$ ($v_f = 0 \sim 23.3\%$)
 $\partial E_{BD} / \partial v_f \approx 0$ ($v_f = 23.3 \sim 47.7\%$)
- (iv) 破壊までの時間は $2 \sim 7 \mu\text{s}$ (図 7 参照)

となる。破壊時間が数 μs であることを考慮して、この領域における絶縁破壊機構としては、定性的には電子的過程を考えることができる。電子的過程の中で考えられるものとしては、真性破壊、電子なだれ破壊、電子熱破壊、衝撃熱破壊および自由体積破壊の機構が挙げられる⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。 $\partial E_{BD} / \partial T \approx 0$ の結果より、電子熱破壊、衝撃熱破壊、自由体積破壊は考え難く、真性破壊では E_{BD} の厚さ効果 ($\partial E_{BD} / \partial d < 0$) を説明することが難しい。 $\partial E_{BD} / \partial T \approx 0$, $\partial E_{BD} / \partial d < 0$ の実験結果を考慮に入れると、この領域における過程としては電子なだれ破壊機構を考えることができる。この場合、充てん剤が分散して存在する均一でない系に対して電子なだれ破壊理論を適用した報告はなく、電子なだれ破壊理論の適用の妥当性については明白でない。本論文では一応、図 6 ($\partial E_{BD} / \partial T \approx 0$) および図 10 ($\partial E_{BD} / \partial d < 0$) の結果に基づいて充てんエポキシ樹脂についても電子なだれ破壊理論を適用する。

簡単のため、単一なだれにおける Seitz 氏の 40 世代理論⁽¹²⁾を用いて実験結果を検討する。この理論に

図 11 $(1/E_{BD})$ と試料厚さの関係

Fig. 11. Relation between $1/E_{BD}$ and thickness of sample.

よれば、試料厚さが d であるときの E_{BD} は次式で与えられる⁽¹³⁾。

$$E_{BD} = H / \ln(d/40\lambda) \dots \dots \dots (1)$$

ここで

$$H = \left(\frac{m}{2e^2} \right)^{1/2} \int_{\epsilon_{av}}^I \frac{d\epsilon}{\sqrt{\epsilon} \bar{\tau}(\epsilon)} \dots \dots \dots (2)$$

ただし、 $\bar{\tau}(\epsilon)$: エネルギー ϵ を有する電子の平均衝突時間、 I : イオン化エネルギー、 ϵ_{av} : 自由電子の $t=0$ におけるエネルギー、 e : 電荷量、 m : 電子質量、 λ : 電子の平均自由行程

また、電界が E であるときの電子の移動度 μ は次式で求まる。

$$\mu = (e\lambda/m)^{1/2} E^{-1/2} \dots \dots \dots (3)$$

以上のことを基礎とし、実験結果から H , λ および μ の推定を次に行なう。まず、(1)式を変形して

$$1/E_{BD} = (1/H) \ln d - (1/H) \ln 40\lambda \dots \dots \dots (4)$$

とし、 $y = 1/E_{BD}$, $a = 1/H$, $x = \ln d$, $b = (1/H) \ln 40\lambda$ とおくと、(4)式は簡単に

$$y = ax - b \dots \dots \dots (5)$$

と表わせる。従って、 y と x の関係をプロットし、その直線の傾きと y 切片とから、 H および λ の値を求めることができる。

図 11 に 0, 40, 250 部充てん試料の実験結果から求めた $1/E_{BD} - \ln d$ の関係を示す。同図から a および b を読み、(5)式の諸関係式から H および λ を求めると表 3 に示すような結果を得る。更に(3)式よ

表 3 H , λ および μ の値
Table 3. Values of H , λ and μ .

諸定数 材料	エポキシ			ポリエチレン ⁽¹⁴⁾
	0 部 (無充てん)	40 部	250 部	
H (MV/cm)	18.4	6.1	3.2	20.0
λ (Å)	750.0	5,552.0	8,882.0	250.0
μ (cm ² /V·s)	51.0*1	154.9*2	279.3*3	27.0*4

*1: $E = 5$ MV/cm, *2: $E = 4$ MV/cm

*3: $E = 2$ MV/cm, *4: $E = 6$ MV/cm

り $E = 5$ MV/cm (無充てんの場合), $E = 4$ MV/cm (40 部充てん), $E = 2$ MV/cm (250 部充てん) におけるそれぞれの移動度 μ の計算結果も併せて表 3 に示す。なお, 充てん部数により E が異なるのは破壊電界強度を用いたためである。以上の結果は, 電子なだれ破壊理論を適用するときの条件⁽¹³⁾

$$d > 2.72 \mu H \tau i \left(\tau = \frac{m}{e} \mu \right) \dots \dots \dots (6)$$

を十分満足している。ただし $i = 40$ である。

現在 H , λ および μ の値に関して無充てんおよび充てんエポキシ樹脂についての信頼すべき実験結果が見あたらないので, その妥当性については十分な検討が不可能である。しかしながら, 表 3 に示すように本研究で得られた無充てんエポキシ樹脂についての H , λ および μ の諸量とポリエチレンにつき調べた諸量⁽¹⁴⁾の比較をすると, 値が接近しており不合理でないように思われる。

充てん剤の混入により電子の平均自由行程 λ は表 3 に示したように大きくなる。これは図 12 に示すように, 粒子界面では集中電界⁽¹⁶⁾のために電子の加速度が大きくなり, なだれの成長もそれに伴い大きくなるためと考えられる。

その他としては, 粒子の界面付近を通るなだれ電子が界面の弱点をぬって急激に成長する過程も考えられる。充てん剤入りエポキシ樹脂でのトリーの進展は, 樹脂と粒子の界面が電氣的弱点になって, トリーがこの界面を伝わって伸びて行くという報告⁽³⁾があることより, 界面近傍での急激ななだれ成長は十分可能性のある過程であると思われる。

〈5・2〉領域 II ($T_0 \sim 220^\circ\text{C}$) における絶縁破壊機構
この領域における E_{BD} の諸特性を整理すると

- (i) $\partial E_{BD} / \partial T < 0$
- (ii) $\partial E_{BD} / \partial d < 0$
- (iii) $\partial E_{BD} / \partial v_f < 0$ ($v_f = 0 \sim 23.3\%$)
 $\partial E_{BD} / \partial v_f \approx 0$ ($v_f = 23.3 \sim 47.7\%$)
- (iv) 破壊までの時間は $2 \sim 6 \mu\text{s}$ (破壊時の電圧波形は図 7 と同様)

図 12 粒子間の電界分布

Fig. 12. Electric field distribution between particles.

となる。この領域では〈5・1〉節と同様, 電圧印加開始から破壊に至るまでの時間が $2 \sim 6 \mu\text{s}$ と極めて短いことから, 考えられる絶縁破壊の過程としては電子的過程を挙げることができる。

まず, 実験結果 (i) の $\partial E_{BD} / \partial T < 0$ の温度依存性を説明する過程として電子熱破壊を挙げるとすると, この機構では実験結果 (ii) の $\partial E_{BD} / \partial d < 0$ を説明することが困難であり否定的である。電子なだれ破壊機構とすると (ii) の $\partial E_{BD} / \partial d < 0$ の結果を説明できても, 一方で (i) の $\partial E_{BD} / \partial T < 0$ の温度依存性の説明が困難である。また, 衝撃熱破壊機構を考えると, $\partial E_{BD} / \partial T < 0$ が説明できても $\partial E_{BD} / \partial d < 0$ の説明が困難となる。数 μs 程度の破壊時間では定常熱破壊も考え難い。この領域での最も可能性のある絶縁破壊機構としては自由体積破壊⁽¹¹⁾が考えられる。自由体積破壊は高分子に適用されるもので, 分子運動により自由体積が集積して空孔が生成し, 電界方向に並ぶため空孔内での電子の加速により絶縁破壊が起こるとの考えである⁽¹¹⁾⁽¹⁵⁾。エポキシ樹脂中の自由体積はガラス転移点温度以上で増加し, それに伴い絶縁破壊強度の低下が報告されている⁽¹⁶⁾。本研究で用いたビスフェノール A 形エポキシ樹脂のガラス転移点温度は $110 \sim 120^\circ\text{C}$ であり, 図 6 に示したように無充てんエポキシ樹脂の衝撃電圧による絶縁破壊強度 (E_{BD}) の低下する温度に対応している。

一方, アルミナ充てんエポキシ樹脂の場合にも, 無充てんエポキシ樹脂の場合と同様エポキシ樹脂中での温度上昇に伴う自由体積の増加が, 絶縁破壊強度を低下させるものと考えられる。図 6 に示したように, 無充てんエポキシ樹脂の場合には 100°C より E_{BD} は低下を開始するのに対し, 5 部充てん試料では 115°C より, 40 部充てん試料では 145°C より, 250 部充てん

図 13 充てん部数と T_0 の関係Fig. 13. Relation between filler parts and T_0 .

試料では 200~220°C より低下を開始している。すなわち、アルミナを充てんすることにより、 E_{BD} の低下を開始する温度 (T_0) が高温部へ移行する。充てん部数と T_0 の関係を図 13 に示す。この T_0 の高温部への移行は、アルミナ粒子を充てんすることにより、温度上昇に伴うエポキシ樹脂中での自由体積の増加が抑えられるためと推測される。例えば 250 部充てん試料の場合には、全体積の約 45% がアルミナ粒子により占有されており、この場合温度上昇に伴うエポキシ樹脂中での自由体積の増加する割合が無充てんおよび 5 部、40 部充てん試料に比較して少なくなるため、200°C 程度まで $\partial E_{BD}/\partial T \approx 0$ の特性になるものと考えられる。

以上、領域 II においては温度上昇に伴う自由体積の増加から破壊機構を検討した。このほかにも、充てん剤-樹脂界面の化学的ならびに物理的不整 (例えば密着不良、気層の存在など) によることも考えられる。確かに長時間寿命特性の場合には、界面の化学的、物理的不整が大きな影響を持つことが報告されている⁽³⁾。仮に本実験の場合にも、界面における化学的、物理的不整が影響するものとする、充てん部数の多い試料ほど温度上昇に伴い化学的、物理的不整が増加し、絶縁破壊強度 (E_{BD}) の低下は大きいものと予測される。図 6 の結果より、20°C と 230°C におけるそれぞれの E_{BD} の比をとると

無充てん: $E_{BD}(230^\circ\text{C})/E_{BD}(20^\circ\text{C})=0.67$

5 部充てん: 0.74

40 部充てん: 0.74

250 部充てん: 0.95

となり、充てん部数の多いほど温度上昇に伴う E_{BD} の低下が小さい。この結果より、数 μs 程度で破壊するような衝撃電圧印加の場合の領域 II における破壊は、界面よりも樹脂中の自由体積の増加が破壊の大きな要因と考えた。

なお、領域 II における直流電圧による E_{BD} の温度依存性は、図 6 に示したように衝撃電圧の場合に比較して E_{BD} の低下の割合が大きい。この場合の絶縁破壊機構は、イオン伝導に基づく純熱破壊としてさきに報告した⁽⁶⁾。

6. あとがき

衝撃電圧 (7/100 μs) をビスフェノール A 形エポキシ樹脂に印加したときの絶縁破壊強度 (E_{BD}) に及ぼすアルミナ粒子の影響を、 E_{BD} の温度依存性、厚さ依存性、充てん部数依存性より検討した。そして得られた結果に基づいて、二つの領域における絶縁破壊機構を考察した。

領域 I (20°C~ T_0) (なお、 T_0 は無充てんで 100°C、5 部充てんで 115°C、40 部充てんで 145°C、250 部充てんで 200~220°C である) および領域 II (T_0 ~220°C) に分けて絶縁破壊機構を考察した結果、次のことが得られた。

領域 I の絶縁破壊機構としては、 $\partial E_{BD}/\partial T \approx 0$ 、 $\partial E_{BD}/\partial d < 0$ 、破壊までの時間が 2~6 μs であることより電子なだれ破壊により説明される。充てん剤の混入により絶縁破壊強度 (E_{BD}) の低下する原因としては、粒子界面における集中電界により電子の加速度が大きくなり、なだれの成長を促進するためと考えられる。

一方、領域 II においては $\partial E_{BD}/\partial T < 0$ 、 $\partial E_{BD}/\partial d < 0$ 、破壊までの時間が 2~6 μs と短いことより、自由体積破壊によるものとして考察した。温度上昇に伴うエポキシ樹脂中の自由体積の増加と集中電界の作用が重畳し、絶縁破壊強度 (E_{BD}) を低下させるものと考えられる。充てん剤の混入は、温度上昇に伴う自由体積の増加を抑制し、その結果 E_{BD} の低下を開始する温度 (T_0) を高温側に移行させるものと考えられる。

最後に、本研究に対し御協力下された秋田大学大学院生 蛸沢勝英君 (現在、大日本インキ化学)、同電気工学科高橋重雄技官に謝意を表す。

(昭和 56 年 1 月 29 日受付、同 56 年 7 月 17 日再受付)

文 献

- (1) H. Honjo, W. Toyoshima, M. Tamura & N. Kawamura
"Short and Long-Term Strength Characteristics of

- Particulate-Filled Cast Epoxy Resin", *Polymer Engineering Science*, **14**, 604 (1974)
- (2) 田村・河村・北條:「粒子充填エポキシ樹脂の物性と応用の現状」, プラスチックス, **26**, 38 (昭 49)
- (3) 福士・石川・磯貝:「無機質粉充填エポキシ材料中のトリーと $V-t$ 特性」, 電気学会絶縁材料研資 IM-73-36 (昭 48)
- (4) T.W. Dakin: "Application of Epoxy Resin in Electrical Apparatus", *IEEE Trans. Elect. Insulation*, **EI-9**, 121 (1974)
- (5) R. Lovell: "The Effect of Specimen Size on the Electric Breakdown of Unfilled and Filled Epoxy Polymer" *ibid.*, **EI-11**, 110 (1976)
- (6) 能登・吉村・西田・蛸沢・藤田・田村:「エポキシ樹脂の直流破壊電圧におよぼす充てん剤の効果」, 電学論 A, **101**, 109 (昭 56-2)
- (7) 吉村・太田・佐竹・能登:「衝撃電圧および直流電圧によるポリエチレン中のトリーの発生」, 同上 A, **96**, 433 (昭 51-9)
- (8) 犬石・吹田:「固体の衝撃絶縁破壊と遅れ」, 電学誌, **74**, 150 (昭 29-2)
- (9) D.B. Watson: "The Electric Strength of Perspex as a Function of Voltage Rise Time", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **5**, 410 (1972)
- (10) J.J. O'Dwyer: *The Theory of Electrical Conduction and Breakdown on Solid Dielectrics* (1973) Clarendon Press, Oxford
- (11) J. Artbauer: Zur Temperaturabhängigkeit der Elektrischen Durchschagtestigkeit amorpher Polymeren mit Relaxation unter der Glastemperatur", *J. Polymer Science*, Part C, No. 16, 477 (1967)
- (12) F. Seitz: "On the Theory of Electron Multiplication in Crystals", *Phys. Rev.*, **76**, 1376 (1949)
- (13) 犬石・中島・川辺・家田: 誘電体現象論, p. 293 (昭 48) 電気学会
- (14) 宮入・山内・沢・家田:「低温領域におけるポリエチレンの絶縁破壊」, 電学誌, **91**, 1962 (昭 46-10)
- (15) 田中:「絶縁破壊のメカニズム」, 電気学会絶縁材料研資 EIM-80-65 (昭 55)
- (16) 高浜・林・佐藤:「エポキシ樹脂の絶縁破壊」, 同上 EIM-79-26 (昭 54)