ポリエチレンの耐トラッキング性に及ぼす γ 線照射及び気圧の影響

学生員 杜 伯 学 (東京農工大)

正 員 鈴木研夫 (東京農工大)

正 員 小林繁雄 (東京農工大)

Effects of γ -rays Irradiation and Atmospheric Pressure on Tracking Resistance of Polyethylene

Boxue Du, Student Member, Akio Suzuki, Member and Shigeo Kobayashi, Member
Division of Electronic and Information Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology

Tracking resistance of insulating materials has been studied by many investigators with a test method of the IEC Publ. 112. The effect of different parameters is still far from being well understood. These investigations are further enhanced due to the increasing of organic insulating materials being used in the lower atmospheric pressure and radiation environments of space and nuclear power facilities. This paper presents a study on effects of γ -rays irradiation and lower atmospheric pressure on tracking resistance of polyethylene by use of the IEC Publ. 112 method. Polyethylene samples which were irradiated in air until 1×10^7 R and 1×10^8 R with dose rate of 10^6 R/hr using ^{60}Co γ -source have been employed. The total dose effect on the tracking, namely on the weight loss and erosion depth have been studied under combined conditions. As the total doses are increased, the weight loss and maximum erosion depth decreases, and the rate of reduction increases with decreasing pressure in the investigated range of 1007hPa to 500hPa. The effects of gamma-rays irradiation are determined due to radiation-induced cross-linking. In this case, as the atmospheric pressure is reduced, the tracking resistance decreases. It is considered this is due to the increasing residual carbon on the samples surface.

キーワード：耐トラッキング性、重量減少量、侵食深さ、 γ 線照射、低気圧、高分子架橋

1. まえがき

近年、産業用の電気・電子機器やケーブルなどをはじめとして、民生用の各種電気製品に至るまで、それらにはいろいろな高分子材料が絶縁材料として使用されている。しかも、電気・電子機器などが各種放射線の存在する環境下や、高地（低気圧環境）でも使用されているが^(1~3)、そのような環境における絶縁材料の電気的特性に関する組織的な研究はあまりなされていない⁽⁴⁾。特に製品の故障や感電又は火災事故につながる有機絶縁材料の表面破壊現象であるトラッキングについての研究はほとんどないのが実情である。

絶縁材料の耐トラッキング性試験方法としては、国際的には IEC Pub. 112⁽⁵⁾⁽⁶⁾の比較トラッキング指数 (CTI) を求める方法が有名である。この試験方法は試験電圧は 600V までとなっているが、その試験電圧の範囲で、材料によっては表面に炭化導電路を形成していわゆるトラッキング破壊を起こす場合（トラッキング型）と、表面に炭化導電路

を生じることなく、しだいに表面が侵食されて材料の厚さが減ってくる場合（侵食型）とがある。トラッキング型の材料についての研究の方が侵食型の材料の場合よりも多いのが現状である。

本論文は、比較的試験データの少ない侵食型の高分子絶縁材料の代表例としてポリエチレンをとりあげ、 γ 線照射による耐トラッキング性及び気圧の低下による耐トラッキング性の変化の様子を IEC Publ. 112 に準拠して調べたものである。トラッキング試験において測定したものは重量減少と最大侵食深さであり、これらの結果をシンチレーション放電（放電量と放電パルス数）と関連づけて検討した。

2. 試験装置、試料及び試験方法

<2・1> 試験装置 図 1 は試験装置のうちの電極部分と試験液（電解液）滴下装置部を内蔵した減圧装置の部分を示したものである。減圧容器は内径 38cm、高さ 35cm のガラス円筒と 2 枚のアクリル板のふたによって構成されてい

る。内部はロータリーポンプで減圧した。ただし、容器内の気圧は試験液の蒸発による容器内の曇りを考慮して、リークバルブによりリークさせながらロータリーポンプによって調整した。

図1 試験装置 (一部)
Figure 1. Schematic diagram of experimental setup
(The part of setup).

〈2・2〉 試料 ポリエチレンを試料とし、 γ 線照射は日本原子力研究所高崎研究所の ^{60}Co の γ 線源を利用して空気中で行った。照射線量率は $1.1 \times 10^6 \text{ R/h}$ 、また、照射全線量は $1 \times 10^7 \text{ R}$ 及び $1 \times 10^8 \text{ R}$ である。比較のために未照射試料についても試験を行った。試料の寸法は $20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ である。試料はエチルアルコールを含ませたガーゼで表面をふき、その後24時間以上デシケータ内で保存・乾燥してから初期重量を測定した。

〈2・3〉 試験方法 IEC Publ. 112方法に準拠して行なった予備試験の結果、供試料はすべて試験電圧600Vでもトラッキング破壊をせず、侵食型となった。また、電解液100滴滴下でも最大侵食深さ及び重量減少量あまり大きくなかったため、IEC Publ. 112方法とは異なるが、滴下数は200滴として侵食の最大値及び重量の減少量を測定した。試験は以下の手順で行った。初期重量及び試験後の試料の重量の測定はメトラー直示天秤 (最大160g、精度 $d = 0.01 \text{ mg}$) を用いて行った。次に両白金電極の距離を4mmに設定してから、両電極の端で試料面に対して100gの圧力が加わるようにした。各電圧において短絡電流が $1 \pm 0.1 \text{ A}$ になるように回路抵抗を調整した。電極間に滴下する試験液は0.1質量% NH_4Cl 溶液で、その抵抗率は 23°C で $395 \Omega \cdot \text{cm}$ である。1滴の電解液の滴下量は約 20 mm^3 、30秒間隔で1滴ずつ試料表面に滴下する。両電極のなす角度は60度とし、試料上に対向させた構成になっている。交流の印加電圧は100V～600Vの範囲である。電解液を200滴滴下後、その試料をエチルアルコールで15分間超音波洗浄した後、乾燥剤入りケー

ス中に12時間乾燥してから劣化試料の重量減少量、最大侵食深さを測定した。なお、以上の方法によって、各試験電圧に対し5個の試料で試験を行ない、重量減少量及び最大侵食深さはその平均値で表した。

〈2・4〉 シンチレーション電流波形の測定方法 トラッキング試験の進展に伴い発生するシンチレーション放電及びシンチレーションパルス数を検討するためシンチレーション電流波形検出用装置を実験回路に接続して、高速汎用A/D変換モジュール (AD12-16TA[98]H) を用いて、シンチレーション電流の波形を測定した。なお、本法で用いたA/D変換器のサンプリング時間は0.15msを設定して、周波数50Hzの場合に各サイクルのアナログ信号 (0～10V) を133個のデジタル信号に変換した。なお、一回の測定時間は35秒まで可能である。

3. 試験結果

〈3・1〉 気圧の影響 図2及び図3は試験電圧と重量減少量及び最大侵食深さとの関係を気圧をパラメータとしてそれぞれ示したものである。これらの図からは、気圧の低下につれて重量減少量及び最大侵食深さはともに大きくなることが分かる。つまり気圧の低下に伴い、耐トラッキング性が低下する傾向が明らかに認められる。試験電圧が250V前後で重量減少及び最大侵食深さはピーク値を示した。高電圧側 (400～600Vの範囲) では試料の表面劣化があまり認められなかった。試験時の観測により、200Vから300Vの範囲ではシンチレーションが長い期間に発生するが、400V以上になるとシンチレーションよりも試料表面から少し離れた電極間でアーク放電が発生することが確認できた。これは高い電圧の方が電解液の蒸発のエネルギーが大きく、幅の広い乾燥帯が形成されるため、試料表面のシンチレーションの発生が難しくなるためと考えられる。

図2 減圧した場合の試験電圧と重量減少量との関係
Figure 2. Relationship between applied voltage and weight loss under lower pressure conditions.

〈3・2〉 γ 線照射の影響 図4及び図5は、被照射試料を使用した場合の試験電圧と重量減少量及び最大侵食深さとの関係を γ 線照射量をパラメータとして示したものである。これらの図より、 γ 線照射及び未照射試料とも、重量減少量は250V前後においてピーク値を示した。また、照射量が増加するにつれて重量減少量及び最大侵食深さが全体的に未照射試料より減少する傾向を示した。従って、 γ 線照射によって耐トラッキング性が向上する傾向が認められる。これは照射によりポリエチレンに架橋反応が起こり、三次元的な網目構造を形成して、熱的に強くなったためと考えられる。

〈3・3〉 気圧と γ 線照射の複合要因の影響 図6及び図7は760hPaに減圧した場合の試験電圧と重量減少量及び最大侵食深さとの関係を、それぞれ γ 線照射量をパラメー

タとして示したものである。これらの図より、気圧が760hPaでの重量減少量及び最大侵食深さはともに1007hPaの場合より増加する傾向がみられる。ここでも、照射量が多くなると耐トラッキング性が向上する。また、図8及び図9は500hPaに減圧した場合の試験電圧と重量減少量及び最大侵食深さとの関係を示したもので、図8より、重量減少量は760hPaより更に増加することが分かる。また、760hPaの場合と同様に、照射量とともに重量減少量は小さくなる傾向を示した。ただし、図9に示す500hPaの場合は電圧の高い方で部分的に深い細い穴（貫通はしていない）を形成するため、400V前後から、最大侵食深さも大きくなった。これは試料表面に近い部分での電極間のアーク放電による熱の影響と考えられる。図10の写真から低電圧（200V）と高電圧（500V）での試料表面の侵食の仕方の違いが分かる。

図3 減圧した場合の試験電圧と侵食深さとの関係
Figure 3. Relationship between applied voltage and erosion depth under lower pressure conditions.

図5 γ 線照射した場合の試験電圧と侵食深さとの関係
Figure 5. Relationship between applied voltage and erosion depth with irradiation conditions.

図4 γ 線照射した場合の試験電圧と重量減少量との関係
Figure 4. Relationship between applied voltage and weight loss with irradiation conditions.

図6 γ 線照射した場合の試験電圧と重量減少量との関係
Figure 6. Relationship between applied voltage and weight loss with irradiation conditions.

図7 γ 線照射した場合の試験電圧と侵食深さとの関係
Figure 7. Relationship between applied voltage and erosion depth with irradiation conditions.

図9 γ 線照射した場合の試験電圧と侵食深さとの関係
Figure 9. Relationship between applied voltage and erosion depth with irradiation conditions.

図8 γ 線照射した場合の試験電圧と重量減少量との関係
Figure 8. Relationship between applied voltage and weight loss with irradiation conditions.

〈3・4〉 放電量及び放電パルス数 本試験では、試料の重量減少及び試料表面の侵食が生じるのは、シンチレーション放電のエネルギーによる熱劣化によるものであると考えられる。気圧の低下及び γ 線照射線量の増加に伴う重量減少及び最大侵食深さの変化と放電エネルギーとの関係についての知見を得るために、低気圧状態における γ 線照射試料について、シンチレーション放電量および放電パルスの測定を行った。

シンチレーション電流値に対する放電量の大きさはその電流値を超えたパルスピークの面積を用いることにする。すなわち、例として、シンチレーション放電の波形の一部(30ms)と時間との関係を図11に示す。測定期間にその電流値 I_0 を超えたパルスの積分値は I_0 に対応する放電量の大きさと定義する $\{Q_{I_0} = \sum_{j=1}^7 Q_{I_{0j}}\}$ 。以下、シンチレーシ

(a) Applied 200V ($1 \times 10^7 R$)

(b) Applied 500V ($1 \times 10^7 R$)

図10 試験後の試料表面の写真

Figure 10. Surface of specimens after test.

ンの放電量及びパルス数の計算は式（１）及び（２）により行なう。

$$Q_{I_0} = \int_0^{\tau} \int_{I_0}^{|I(t)|} f(i) di dt \dots\dots\dots (1)$$

τ : 測定期間 (図11では30ms)

但し、 $f(i) = \begin{cases} 1 & [|I(t)| \geq I_0] \\ 0 & [|I(t)| < I_0] \end{cases}$

$$P_{I_0} = \sum_{j=1}^n P_{I_j} \dots\dots\dots (2)$$

$j = 1, 2, \dots, n$

P_{I_0} は I_0 (mA) を超えるパルスの総和である。

図11 シンチレーション放電量の大きさの求め方
Figure 11. Definition of scintillation magnitude intensity.

図12 γ 線照射した場合のシンチレーション電流と見掛けの放電量との関係 (1007hPa)
Figure 12. Relationship between scintillation current and apparent scintillation magnitude with irradiation conditions at 1007hPa.

図12は、大気圧雰囲気中で、 γ 線を照射した試料を用いて、電解液滴下50滴目にシンチレーション放電が発生した時点から2.5秒間でのシンチレーション電流に対する放電量の関係である。図12から分かるように未照射試料の場合は放電エネルギーが一番大きく、照射量が多くなるにつれて放電量が減少している。放電パルス数及びシンチレーション電流との関係を図13に示す。小さいシンチレーションのパルス数と照射量との関係は認められないが、約6 mA 以上になると照射量の増加によりシンチレーションパルス数は少なくなることが分かる。このことから小さいシンチレーションより大きいシンチレーションの方が試料表面を劣化（侵食）させることが考えられる。表面の侵食にはシンチレーション電流（従って放電量）に閾値があることを示唆するものと思われる。

図13 γ 線照射した場合のシンチレーション電流と見掛けのパルス数との関係 (1007hPa)
Figure 13. Relationship between scintillation current and apparent scintillation pulses with irradiation conditions at 1007hPa.

図14は、低気圧の500hPaの状態、 γ 線照射試料を用いて、電解液滴下50滴目にシンチレーション放電が発生した時点から2.5秒間でのシンチレーション電流に対する放電の関係である。大気圧条件下の結果（図12）と比べると、それぞれの照射線量の試料の放電量は低気圧条件下の方が大気圧の場合より大きくなっていることが分かる。放電パルス数とシンチレーション電流との関係を図15に示す。図13と同じように小さいシンチレーション電流のパルス数と照射量との関係は認められない。特に、未照射及び照射試料の両方とも大気圧のシンチレーションパルス数より少なくなった。また、10mA 以上になると照射線量の増加によりシンチレーションパルス数は少なくなることが明らかに認められた。

図14 γ 線照射した場合のシンチレーション電流と見掛けの放電量との関係 (500hPa)

Figure 14. Relationship between scintillation current and apparent scintillation magnitude with irradiation conditions at 500hPa.

図15 γ 線照射した場合のシンチレーション電流と見掛けのパルス数との関係 (500hPa)

Figure 15. Relationship between scintillation current and apparent scintillation pulses with irradiation conditions at 500hPa.

4. 結果の検討

前述のように気圧の低下につれてシンチレーション放電量が大きくなることより、 $\langle 3.1 \rangle$ に述べたように試料の劣化の程度が気圧の低下により促進されることが理解できる。これは気圧の低下によりシンチレーション放電が起こりやすくなること、あるいは、気圧の低下により大気中の酸素量が減少し、遊離炭素の酸化による気化反応が起こる確率は減少し、その結果遊離炭素が試料表面に点在して残り易くなり、その間でのシンチレーションの発生が容易となることを意味している。その結果、重量減少量及び最大侵食深さが大きくなったものと思われる。比較的に低い試験電圧において侵食の程度が相対的に大きくなったことは、目視及び観測した波形より、シンチレーションがこの電圧範

囲で頻繁に発生し、そのため試料の表面が劣化して、重量減少量及び最大侵食深さが大きくなったと考えられる。一方、比較的に高い電圧の場合は、電解液を速く蒸発させてしまうため、乾燥帯の幅が広くなり、従ってシンチレーションの発生確率が小さくなり、試料の劣化もし難くなるものと考えられる。未照射試料の方が照射試料よりシンチレーション放電量が大きいので (図12、図14)、 $\langle 3.2 \rangle$ で述べたように γ 線を照射することにより試料表面の劣化程度が軽くなることが理解できる。さらに、ポリエチレンに γ 線を照射すると⁽⁷⁾、架橋反応を起こして立体的な網目構造となるため熱的にも強くなるので、耐トラッキング性が向上する方向に作用することになる。

5. あとがき

ポリエチレンに γ 線を照射し、かつ気圧を変えた状態で IEC Publ. 112 に準拠した耐トラッキング性試験を行った。試験電圧により侵食の程度は異なり、試験電圧が400V以上になると試料はあまり侵食しないのに対して、試験電圧が200V~300Vの範囲では侵食は最大となった。試験電圧200V~300Vにおける耐トラッキング性試験後の重量減少量及び最大侵食深さは、気圧の低下と共に増加し、また γ 線照射量の増加とともに減少した。これらの劣化過程を、放電電荷量および放電パルス数を基に検討した。得られた結果をまとめると次の通りである。

(1) ポリエチレンの侵食の程度とシンチレーション放電量の大きさは関係があることが分かった。劣化に関与するシンチレーション電流 (放電量) には閾値があることが示唆された。

(2) 気圧の低下により大気中の酸素が減少し、シンチレーション放電の熱によってポリエチレン表面が分解されて析出した炭素が酸化してCOとかCO₂などになって気化する確率が減る。従って、試料表面に炭素が点在するような形で残ることが考えられる (もちろん、炭化導電路が形成される状態とはほど遠い炭素の残り方である)。ポリエチレン表面に炭素が点在することでシンチレーションの発生が促進される。つまり気圧の低下に伴ってポリエチレンの重量減少量及び最大侵食深さは増大し、耐トラッキング性が低下する。

(3) ポリエチレンに 1×10^8 R程度まで γ 線を照射すると架橋反応を起こして三次元の網目構造となるので、熱的に強くなる。また被照射ポリエチレンではシンチレーションの発生頻度は未照射ポリエチレンより減少することが示された。

従って、 γ 線の照射により重量減少量及び最大侵食深さは減り、耐トラッキング性は向上する。しかし、 γ 線照射ポリエチレンでも気圧の低下によりシンチレーション放電量は多くなるので、気圧の低下に伴って耐トラッキング性は低下する傾向を示す。

(平成7年6月2日受付、同7年7月18日再受付)

- (1) Robert B. Blodgett and Robert G. Fisher: "Insulations and jackets for control and power cables in thermal reactor nuclear generating stations", *IEEE Trans. Power Apparatus. Syst.*, **PAS-88**, 529~537 (1978)
- (2) 下平・山田: 「電子機器に対する宇宙環境の影響」、*静電気学会誌*, **13**, 182~188 (1989)
- (3) 鈴木・能登・小林等: 「高地での絶縁材料の耐アーク性」、*電学論 A*, **109**, 175 (1989)
- (4) 杜・鈴木・小林: 「有機絶縁材料の耐トラッキング性に及ぼす気圧の影響」、1994年電気学会全大、No. 294
- (5) IEC Publ.112, 2nd edition (1971), "Recommended method for determining the comparative tracking index of solid insulating materials under moist conditions".
- (6) IEC Publ.112, 3rd edition (1979), "Method for determining the comparative and the proof tracking indices of solid insulating materials under moist conditions"
- (7) 岡村: 「放射線高分子化学」、pp. 91~155, 地人書館 (1966)

杜 伯 学 (学生員) 1961年9月26日生。1993年3月茨城大学大学院工学研究科修士課程修了。同年4月東京農工大学大学院工学研究科博士課程入学。現在に至る。有機絶縁材料の耐トラッキング性に及ぼす環境要因の影響に関する勉学と研究に従事。

鈴木 研夫 (正員) 1955年8月27日生。1981年3月東京工業大学大学院総合理工学研究科修士課程修了。1991年4月東京農工大学工学部助手。現在に至る。理学博士。主として太陽エネルギー変換、エネルギー変換理論、非結像系集光系などの研究に従事。日本物理学会、日本機械学会、エネルギー・資源学会、日本太陽エネルギー学会、国際太陽エネルギー学会会員。

小林 繁雄 (正員) 1932年11月20日生。1959年3月東京工業大学大学院理工学研究科修士課程修了。同年4月同大学理工学部助手。1964年4月東京農工大学工学部助教授、1977年同教授、現在に至る。工学博士。主として、強誘電体の誘電特性およびSF₆ガスの絶縁特性に及ぼす放射線照射の影響、有機絶縁材料のトリッキング、トラッキングに関する研究に従事。IEC SC15AおよびSC15B国内委員会委員長。1990年電気学会論文賞受賞。電子情報通信学会、高分子学会、IEEE会員。