マイカ・アルミナ複合絶縁材の高温課電下における絶縁劣化要因の検討

正員 金神雅樹 (電中研)

正員 伊藤哲夫 (電中研)

正員 岡本達希 (電中研)

正員 三井久安 (東芝)

正員 熊澤良二 (東芝)

非会員 相澤利枝 (東芝)

The Factors of Electric Deterioration of Mica-Alumina Combined Insulation under Thermal and Electrical Stresses

Kanegami Masaki, Ito Tetsuo, Okamoto Tatsuki, Member(Central Research Institute of Electric Power Industry)
Mitsui Hisayasu, Kumazawa Ryoji, Member, Aizawa Rie, Non-member(Toshiba Corporation)

This paper describes some factors of mica-alumina combined insulation deterioration based on breakdown tests, aging tests and material analysis at elevated temperature range of 550-825 Å. The initial breakdown voltage of specimens were measured with an improved breakdown test method having less data scatter than conventional ones. The effect of applied voltage was quantitatively clarified through the difference of the life time among the specimens deteriorated with voltage stress and without voltage stress at elevated temperature. It is found that the more the electrode metal diffusion layer grows the lower the breakdown voltage becomes. It is found that the breakdown voltage can be estimated through the thickness of undiffused layer. The metal diffusion was estimated with an EPMA. Based on the experimental results, it is concluded that the metal diffusion into insulation is the primary factor of dielectric deterioration in mica-alumina combined insulation at elevated temperature.

キーワード：高速増殖炉，電磁ポンプ，電気絶縁，無機絶縁，劣化

1. まえがき

高速増殖炉(FBR)の実用化には、安全性および信頼性の確保と同時に経済性が要求される。このためにはナトリウム浸漬型主循環電磁ポンプを開発する必要がある。このポンプは、500~600℃の高温条件下で炉内にポンプを設置する場合に想定される約 $10^{15} \sim 10^{17} \text{ n/cm}^2$ 程度の累積中性子照射条件に耐えなければならない。そのためポンプ用コイルの絶縁材料にも過酷な条件が課せられることになる。

筆者らは、マイカを主体とする絶縁システムにおいて、実機運転条件でのヒートサイクル試験により絶縁特性を検証する方法や劣化特性を検討し、その実現性の見通しを得た^{(1)~(5)}。これらの成果を踏まえ、高温課電環境下における絶縁破壊・劣化特性を調査し次のことを明らかにした。すなわち、750℃以上では課電してから絶縁破壊するまでの時間(絶縁寿命)が活性化エネルギー約5.9eVのアレニウス則にはほぼ従うこと、電極の銅が絶縁体中へ拡散しその拡散速度が活性化エネルギー約0.9eVのアレニウス則に従うこと、試料中を流れる交流漏れ電流が約10mAを超えると電流の増加割合が増し絶縁破壊に至ること、などが判明した⁽⁶⁾。

本論文では、マイカ・アルミナ複合絶縁材の高温環境下における絶縁劣化の支配要因が、電極金属の絶縁体中への拡散浸透であることを述べる。

2. 試料および実験方法

<2・1> 実験試料 試料は軟質集成マイカと軟質はがしマイカの2種類であり、いずれもアルミナクロスで裏打ちされたテープ状のものを使用し、バーコイル形状とした。試料の構造を図1に示す。マイカテープを1/2ラップで4層重ね巻き、最外層をアルミナクロステープで補強した。マイカテープを無機化シリコン系バインダで固定し、絶縁厚を集成マイカ試料で約3.1mm、はがしマイカ試料で約3.5mmとした。内部導体として表面を5μmの厚さでニッケルメッキした純銅を用いた。酸化劣化防止および内部放電の発生抑止のために接地(外部)電極として銀箔を用い、電極内で絶縁破壊が発生するように沿面距離を増加させるとともに接地電極端部にストレスコーンを装着した。さらに端部放電および電極間でのフラッシュオーバーを抑えるために全体をアルミナクロス系絶縁物で被覆した。

図1 バーコイル試料形状
Fig.1. Bar-coil specimen shape

<2・2> 新品試料の絶縁破壊実験方法 図2に示す高温課電エージング試験装置を用い、試料に課電した。最初の課電電圧を、雰囲気温度を一定に保ったまま課電開始時の交流漏れ電流が8mAを越えない範囲とした。課電開始から試料の温度上昇が飽和するまで30分程度かかることから、一つの電圧ステップ毎に30分間電圧を保持した。この間に絶縁破壊しなければ0.5kVあるいは1kV昇圧し次の電圧ステップとした。恒温槽の設定温度を550~825℃とし、各温度3点ずつ測定した。恒温槽内を、これまでの実験と同様に窒素ガス雰囲気（酸素濃度2%程度以下）とした。課電中に、絶縁特性測定装置（総研電気製DAC-HTM）を用いて、試料の交流漏れ電流、誘電正接、静電容量を5分間隔で自動的に測定・記録した。

図2 高温課電エージング試験装置の模式図
Fig.2. Schematic diagram of evaluation system of dielectric characteristics under high temperature

<2・3> 課電エージング方法 集成マイカ試料で750℃, 1100時間, はがしマイカ試料で775℃, 2400時間, 無課電でエージングし, その後それぞれ同一の雰囲気温度

で2.5kVの課電を開始し, 試料が破壊するまでの時間を測定した⁽⁶⁾。集成マイカ試料4点, はがしマイカ試料2点を供試した。課電中に, 試料の交流漏れ電流, 誘電正接, 静電容量を自動的に測定・記録した。測定間隔を通常1時間とし, どれかの試料の交流漏れ電流が10mA以上となった場合のみその試料が破壊するまで測定間隔を10分とした。絶縁破壊後, 課電を停止し破壊した試料の接地電極を浮遊させ, 残った試料への課電を再開した。なお, 恒温槽内に窒素ガスを注入し, 酸素濃度が2%以下となるようにした。

3. 実験結果

<3・1> 新品試料の絶縁破壊電圧 図3および図4に550℃および800℃における課電電圧および交流漏れ電流の経時変化の例を示す。550℃では課電開始から150分間で9kVまで昇圧し, 漏れ電流が4mA程度まで増加した。その後, 9.5kVに昇圧し次の測定までの5分以内に試料が絶縁破壊した。一方800℃では電圧を3kVに昇圧した後25分後に漏れ電流が10mA程度から30mA程度まで急激に増加し, 数分以内に試料が絶縁破壊した。今回の課電方法, すなわち印加電圧上昇のステップ時間を試料の熱時定数よりも大きい30分程度とする方法により, 近似的ではあるが定常熱破壊⁽⁷⁾する電圧を求めることができる。図5に得られた絶縁破壊電圧を示す。集成マイカ試料およびはがしマイカ試料ともに, 雰囲気温度が高くなるに従い破壊電圧が低下し, 集成マイカ試料の場合, 550℃で破壊電圧が約9kVであるが, 800℃で約3.5kVとなった。はがしマイカ試料はいずれの温度でも集成マイカ試料よりも1kV程度大きい絶縁破壊電圧であった。

<3・2> 熱エージングした試料の課電絶縁寿命

熱エージングのみを施した集成マイカ試料の, 課電後の交流漏れ電流の経時変化を図6に示す。同図において, 試料番号C-34の試料が課電後200時間程度で電流が急増し破壊に至った。一方, 熱エージングを受けた試料の課電寿命を, 今までに得られたデータ⁽⁶⁾とあわせて図7に示す。集成マイカ試料で200~700時間, はがしマイカ試料で900~1200時間となり, 熱エージングにより課電寿命が短くなった。

<3.3> 試料絶縁体のEPMA分析 図8に示す様に熱課電エージングあるいは熱エージングさせた試料の中央付近断面で, 銀元素（接地電極材料）および銅元素（内部電極材料）の絶縁層の厚さ方向への拡散距離を調べた。

銀元素の観察結果の例を図9に示す。同図は集成マイカ試料を750℃の雰囲気中で1476時間無課電でエージングした場合である。同図の白い部分がX線強度が弱い部分で, 黒くなるにつれてX線強度が強くなる。測定時間25ミリ秒当りのX線カウント数が6以上の部分を銀元素の拡散領域とした。各試料における銀元素の拡散距離を求めた結果を表1に示す。同表に, 銅元素の拡散距離と金属元素の拡散が見られない絶縁層の厚さも示した。はがしマイカ試料のD-

図3 交流漏れ電流の経時変化 (集成マイカ, 550℃)
Fig.3. Temporal change of leakage current of bar-coil specimen

図4 交流漏れ電流の経時変化 (集成マイカ, 800℃)
Fig.4. Temporal change of leakage current of bar-coil specimen

図5 バーコイル試料の初期破壊電圧
Fig.5. Initial breakdown voltage of mica-alumina insulation bar-coil specimen

図6 課電後の交流漏れ電流の経時変化
Fig.6. Temporal change of leakage current of bar-coil specimen after thermal aging

図7 2.5kV連続課電した時の絶縁寿命と無課電熱履歴 (集成マイカ; 1100時間, はがしマイカ; 2400時間) を有する試料の絶縁破壊するまでの時間
Fig.7. Life time difference of bar-coil specimens with and without thermal aging

図8 試料構造と分析領域
Fig.8. Cross-section of bar-coil specimen and analysis area

55は、雰囲気温度が825℃と比較的高いが、エージング時間が42時間と短い試料である。この試料の銅元素の拡散距離は約20 μm と小さいが、銀元素の拡散距離は約800 μm と大きかった。一方集成マイカ試料のC-9は、雰囲気温度が750℃で、エージング時間が1000時間と比較的長い試料であり、銀元素と銅元素の拡散距離がそれぞれ約1100 μm と約900 μm で同程度であった。

図9 バーコイル試料の元素分布
(集成マイカ, 750℃, 無課電, 1476時間)
Fig.9. Metal diffusion layer in bar-coil specimen

表1 銀および銅元素の拡散距離と残存絶縁厚さ
Table 1 Metal diffusion layer depth and undiffused layer thickness

試料名 (注)	温度 [℃]	電圧 [kV]	時間 [hour]	銀 [μm]	銅 [μm]	残存厚 [μm]
A-46	750	0	4000	1000	800	1450
C-9	750	2.5	1100	1100	900	1450
C-24	750	2.5	1100	900	750	1650
C-29	750	2.5	1100	1200	800	1550
C-31	750	0	1476	900	900	1600
C-34	750	0	1476	850	750	1700
C-23	750	0	1963	1100	950	1500
D-57	775	2.5	1728	650	350	1800
D-56	775	2.5	2206	800	500	2000
D-50	800	2.5	609	1000	200	2300
D-55	825	2.5	42	800	20	2150
D-83		0	35	900	200	2600

(注) 試料名は、試料の管理番号で表した。
A,C; 集成マイカ, D; はがしマイカ

このように、銅元素の拡散距離が温度や時間など実験条件ごとに異なるのに対し、銀元素の拡散距離が実験条件によらずほぼ1000 μm となった。これは、内側で導体とマイカ層が接していたのに対し、外側でアルミナ層と補強用アルミナテープ合わせて約1000 μm のアルミナ層が存在し銀箔と接していたことから、銀元素が多孔質のアルミナ中を

短時間で拡散した結果であると思われる。

4 考察

<4・1> 絶縁破壊強度の推定 実験で用いた試料がマイカ・アルミナテープを巻いた層状絶縁であることから、必ずしも電磁力線に沿って電流が分布するとは限らない。また、金属元素の拡散も厚さ方向のみでなくマイカ・アルミナテープに沿う方向も存在すると考えられ、電界が最大となる場所が時間的に変化している可能性もある。したがって、電界分布を計算して電流分布を求めることが容易でないため、金属元素の拡散が見られない絶縁厚で絶縁破壊電圧を除して絶縁破壊強度とした。新品試料と熱課電エージングした試料との絶縁破壊強度を推定した結果を図10に示す。同図において両者の絶縁破壊強度がよく一致していることが分かる。このことから近似的ではあるが、金属元素の絶縁体中への拡散が絶縁性能の低下をもたらす大きな要因であることが示唆される。また、図3において新品試料の絶縁破壊電圧が集成マイカとはがしマイカとで異なったが、図10において破壊強度で比較すると両者にほとんど差がなかった。

図10 金属元素の拡散が見られない絶縁厚から推定した破壊強度

Fig.10 Breakdown strength estimated from metal undiffused layer thickness

<4・2> 絶縁寿命へ与える課電の影響 エージング中の温度上昇分を補正した推定試料温度 T と寿命 t との関係を図11にアレニウスプロットで示す。同図から、課電エージングした試料と熱エージングした試料との区別なく、 t が式(4.1)で表されることが分かる。

$$t = A \cdot e^{\frac{E_i}{kT}} \quad (4.1)$$

ここで、 k : ボルツマン定数, A : 試料ごとに異なる定数, および E_i : 活性化エネルギーはそれぞれ次の値である。

$$k = 8.62 \times 10^{-5} [\text{eV/K}]$$

集成マイカ試料；

$$A = 7.77 \times 10^{-24} [\text{hour}]$$

$$E_i = 5.35 [\text{eV}]$$

はがしマイカ試料；

$$A = 1.05 \times 10^{-25} [\text{hour}]$$

$$E_i = 5.92 [\text{eV}]$$

このように、熱課電エージングにおける課電の影響は、主として試料の温度上昇に寄与していると考えることが妥当である。

図 11 バーコイル試料の絶縁破壊時間と推定試料温度との関係

Fig.11 Electrical life of bar-coil specimens as a function of estimated specimen temperature

5. むすび

十分に焼成し、漏れ電流の監視により初期特性を安定化させたマイカ・アルミナ複合絶縁バーコイル試料（集成マイカ・アルミナ、はがしマイカ・アルミナの2種類）を用いて高温課電実験を行い、絶縁破壊電圧を測定するとともに電極金属の拡散分布測定を行い以下の結果を得た。

(1) バーコイル試料の破壊電圧をばらつき少なく測定する実験法として、電圧を階段状に課電し、ジュール熱による試料の温度上昇の飽和を待って昇圧する方法を提案した。550～825℃におけるバーコイル試料の初期破壊電圧を測定した結果、550℃で約10kVであり温度の上昇とともに直線的に低下した。

(2) 集成マイカ試料で、750℃、1100時間の熱エージングのみを受けた試料の同一温度での課電絶縁寿命が200～700時間であり、熱エージングを受けていない試料の700～1000時間よりも短くなることが明らかとなった。またはがしマイカ試料でも、775℃、2400時間の熱エージングのみを受けた試料の同一温度での課電絶縁寿命が900～1100時間であり、熱エージングを受けていない試料の1700～2400時間よりも短くなることが明らかとなった。

(3) 750～825℃、2.5kVで熱課電エージングし絶縁破壊した試料について、EPMA分析により金属元素の拡散が見られない絶縁厚を求め、この絶縁厚にもとづいて絶縁破壊強度を計算し、初期の絶縁破壊電圧から求めた絶縁破壊強度と比較した。その結果、新品試料における絶縁破壊強度とエージング後の金属拡散が見られない部分の絶縁破壊強度とがほぼ一致することが明らかとなった。

以上より、バーコイル試料の高温環境下における絶縁劣化は絶縁体中への金属元素の拡散が支配的要因であることが明らかとなった。

最後に、本研究の遂行にあたりご指導頂いた電中研電力部長 今城尚久氏、FBR革新技術担当 常盤井守泰氏、木下 泉氏、(株)東芝動力炉開発部部長 井澤 彪氏、プロジェクト担当グループ長 田口淳三氏に深く感謝いたします。また、実験および結果の検討にご尽力頂いた(株)東芝プラント機器制御技術担当 中崎正好氏、電中研プラント熱工学部 沖 裕壮氏、エネルギー化学部 山本 融氏ならびに電力部検討会および専門別検討会各位に感謝の意を表します。

(平成9年9月24日受付、平成10年3月25日再受付)

文 献

- (1)石田他：「セラミックスのFBR電磁ポンプ用絶縁材料としての評価」，電力中央研究所研究報告W89049，平成2年5月
- (2)石田他：「FBR電磁ポンプ用絶縁システムの開発(その1)ーマイカ・アルミナ複合絶縁材の高温絶縁特性ー」，電力中央研究所研究報告W92042，平成5年6月
- (3)石田他：「FBR電磁ポンプ用絶縁システムの開発(その2)ーマイカ・アルミナ複合絶縁材の絶縁劣化特性ー」，電力中央研究所研究報告W93035，平成6年3月
- (4)石田他：「マイカ・アルミナ複合絶縁材料の高温絶縁特性」，電気学会論文誌A，115巻2号，pp.107-114，平成7年2月
- (5)香月他：「Na浸漬型電磁ポンプ用コイルの高温ヒートサイクル試験」，電気学会研究会資料DEI-92-108，pp.11-20，1992年12月
- (6)伊藤他：「マイカ・アルミナ複合絶縁材の高温中での絶縁寿命特性」，電力中央研究所研究報告W95025，平成8年5月
- (7)家田正之編著：「現代 高電圧工学」，オーム社，p.52，1981年

金神 雅樹

(正員) 1968年11月17日生。1993年3月名古屋大学大学院工学研究科電気工学専攻博士前期課程修了。同年4月(財)電力中央研究所入所。現在、同所横須賀研究所電力部主任研究員。電気絶縁材料の部分放電劣化に関する研究に従事。

相澤 利枝

(非会員) 1968年8月15日生。1992年3月関東学院大学工学部工業化学科卒業。同年(株)東芝入社、現在同社動力炉開発部にて、高温電磁ポンプの開発に従事。

伊藤 哲夫

(正員) 1948年1月22日生。1966年3月横須賀工業高校電気科卒業。同年4月(財)超高压電力研究所入所。1977年(財)電力中央研究所入所。現在、同所横須賀研究所電力部主任研究員。電力ケーブル線路等の熱解析に関する研究に従事。

岡本 達希

(正員) 1951年9月21日生。1976年3月名古屋大学大学院工学研究科電気工学専攻修士課程修了。同年4月(財)電力中央研究所入所。現在、同所横須賀研究所電力部上席研究員。主として、電気絶縁材料に関する研究に従事。工学博士。1983、1994年電気学会論文賞受賞。IEEE会員。

三井 久安

(正員) 1942年9月7日生。1965年3月名古屋工業大学工業化学科卒業。同年(株)東芝入社。現在、同社重電技術研究所化学・絶縁技術開発部主管、工学博士、技術士(電気・電子部門)。1973年日本電機工業会発達賞、1987年日本非破壊検査協会奨励賞受賞。IEEE会員。

熊澤 良二

(正員) 1942年2月28日生。1960年弘前工業高校電気科卒業。同年(株)東芝入社。現在、同社重電技術研究所化学・絶縁技術開発部主査。重電機器絶縁システムの開発評価に従事。