金属-高分子複合材料の空間電荷分布測定に関する考察

正員 和田守美穂* 正員 福岡 眞澄* 正員 長尾 雅行**
正員 副井 裕*** 正員 前野 恭****

Consideration of Space Charge Measurement on Metal-Polymer Laminate Materials

Miho Wadamori*, Member, Masumi Fukuma*, Member, Masayuki Nagao**, Member,
Yutaka Fukui***, Member, Takeshi Maeno****, Member

Polymer, common insulating material, can be used with the metal layer. In order to investigate the reliability of its insulation performance, it is important to measure space charge by the pulsed electro-acoustic (PEA) method. However, it is difficult to measure space charge correctly because of the acoustic characteristic difference between the polymer and the metal layer. Therefore, we have proposed the numerical analysis model on PEA method for generation and propagation of acoustic wave in order to discuss the error factors in space charge measurement.

In this paper, the results from the numerical analysis on the metal-polymer laminate material have proved that the metal material could have some influences on the results of space charge measurement.

キーワード：空間電荷，パルス静電応力法，複合材料，数値解析，音響インピーダンス

Keywords：space charge, pulsed electro-acoustic method, laminate material, numerical analysis, acoustic impedance

1. まえがき

高分子材料は、絶縁材料としても広く使用されている。しかし、実用状態では、プリント基板のように高分子材料に金属電極を取り付けて使用する場合がある。一方、絶縁材料の絶縁性能を評価する方法の一つとして、パルス静電応力(PEA)法⁽¹⁾による空間電荷分布測定がある。PEA法は空間電荷に比例した圧力波(音波)を、印加するパルス電界により発生させ、その音波をセンサで検出する方法である。このため、プリント基板のような金属-高分子複合材料の空間電荷分布を測定する場合には、金属と高分子の音響的性質が大きく異なるので、正確な空間電荷分布を測定することは難しい。

筆者らは、PEA法におけるこのような測定誤差を分析し

て取り除くため、音波の発生と伝搬に関する数値解析モデルを提案し、調査を行ってきた⁽²⁾⁽³⁾。数値解析モデルを用いることによって、音波の発生、伝搬の時間的な変化と空間的な変化を同時に考察することができるため、測定誤差の予測や解析を行うことが可能になると考えている⁽⁴⁾。

ここでは、金属-高分子複合材料の空間電荷分布測定結果について、数値解析モデルにより、金属層が測定結果に及ぼす影響について考察を行ったので報告する。

2. 測定結果

金属-高分子複合材料として、厚さ 0.5 mm の PET(ポリエチレンテレフタレート)と厚さ 0.1 mm の銅接着シート(ユニホビー素材シリーズ, HIKARI Co., LTD.)を図 1(a), (c), (e)のように構成し、PEA法により空間電荷分布を測定した。直流印加電圧を 5 kV, パルス電圧を 750 V として測定した際に、PEA装置のセンサが検出する信号(センサ信号)をそれぞれ図 1(b), (d), (f)に示す。なお、銅接着シートにはあらかじめ接着剤が塗布されていたが、この接着層は測定結果へ影響を及ぼす可能性があり、金属層の影響のみに着目するため、接着剤を取り除いて使用した。また、PEA測定装置の上部電極(UE)は半導電シート(Semi-con), 下部電極(LE)はアルミ電極(Al)であり、試料間および電極-試料間にはシリコーンオイルを塗布して測定を行った。

図 1(b), (d), (f)の測定結果から、銅-PET複合材料の空

* 松江工業高等専門学校
〒690-8518 松江市西生馬町 14-4
Matsue National College of Technology
14-4, Nishiikuma-cho, Matsue 690-8518
** 豊橋技術科学大学
〒441-8580 豊橋市天伯町雲雀ヶ丘 1-1
Toyohashi University of Technology
1-1 Hibarigaoka, Tenpaku-cho, Toyohashi 441-8580
*** 鳥取大学
〒680-8550 鳥取市湖山町南 4 丁目 101
Tottori University
4-101 Minami, Koyama-cho, Tottori 680-8550
**** 通信総合研究所
〒184-8795 小金井市貫井北町 4-2-1
Communication Research Laboratory
4-2-1 Nukui-Kitamachi, Koganei 184-8795

間電荷分布測定について、次のことがわかる。

(1) 図 1(b)と(d)を比較すると、PET と LE の間に銅板を挿入した場合(Type B), 空間電荷が存在しない位置(図 1(d)中の①, ②)に音波が観測されている。

(2) 同じく図 1(b)と(d)を比較すると、PET と LE の間に銅板を挿入した場合(Type B), PET の両界面位置の音波は、PET のみの場合(Type A)に比べてどちらも 60%程度に振幅が小さくなっている。

(3) 図 1(d)と(f)を比較すると、PET と UE の間に銅板を挿入した場合(Type C), PET/Cu 界面位置の音波の振幅が、PET のみの場合(Type A)に比べて約 10%程度まで小さくなっている。

実際は、Type A～C のいずれも電荷が PET の両界面位置のみに存在し、その大きさが等しいと考えられるため、銅板を挿入することにより測定誤差が生じていると考えられる。このような測定誤差を分析するために、音波の発生と伝搬を扱う数値解析モデル⁽²⁾⁽³⁾を用いて考察を行った。以下では数値解析モデルと数値解析の結果を示す。

3. 数値解析モデル

固体中の音波(圧力)伝搬を表す基本式は以下のように表される⁽⁴⁾。ここで、密度、ヤング率をそれぞれ ρ_0 , ξ_0^{-1} (ξ_0 はヤング率の逆数)とすると、粒子速度 $\mathbf{v}_x$ および圧力 p_x の関係は以下になる。

$$\rho_0 \frac{\partial \mathbf{v}_x}{\partial t} = -\text{grad } p_x \quad \text{.....(1)}$$

$$\xi_0 \frac{\partial p_x}{\partial t} = -\text{div } \mathbf{v}_x \quad \text{.....(2)}$$

ここで、 x , t はそれぞれ位置と時間である。

音波の反射と透過に関する音響インピーダンス Z と音速 c は、 ρ_0 および ξ_0 との間に次の関係がある。

$$\rho_0 = \frac{Z}{c}, \quad \xi_0 = \frac{1}{Zc} \quad \text{.....(3)}$$

一方、電極界面や試料内部での電界 $\mathbf{E}_x$ については、ポアソンの方程式に基づいて求めることになり、次式で表される。

$$\text{div}(\text{grad } \phi_x) = -\frac{q_x}{\varepsilon} \quad \text{.....(4)}$$

ここで、 ϕ_x : 電位, q_x : 電荷密度, ε : 誘電率である。

パルス電界 $e_p(x,t)$ の印加によって発生する音波については文献⁽¹⁾に従い次式で表されるとした。

$$p(x,t) = e_p(x,t)q(x) \quad \text{.....(5)}$$

実際に数値解析を行う場合、以上の基本式を離散系に展開して使用した。ただし、音波が異なる複数の媒質中を進行するため、 ρ_0 , ξ_0 が位置によって異なることから、 ρ_0 , ξ_0 はともに位置に関するパラメータを含むこととした。また、数値解析モデルでは、各試料界面に、等しい粒子速度を与えることにより音波を発生させた⁽⁵⁾。

図 1 試料の形状と測定結果
Fig. 1. Configurations of specimen and experimental results.

4. 数値解析の結果

〈4・1〉 数値解析の結果とその考察 前章の数値解析モデルにより、図 1(a), (c), (e)に示した Type A～C の 3 つの試料形状について、数値解析を行った。それぞれの解析結果を図 2(a), (b), (c)に示す。ここでは、センサが検出する音波信号(センサ信号)からデコンボリューション処理した空間電荷分布について数値解析を行うよりも、センサ信号について数値解析を行う方が直接的であると考えられる。そこで、粒子速度を与える際のパルス波形は、実験に用いた PEA 装置のインパルス応答を使用した。数値解析で使ったパルス波形(インパルス応答)を図 3 に示す。図のインパルス応答は、厚さ 1.1 mm のアクリル板を被測定試料とし、直流印加電圧 $V_{dc}=11$ kV、パルス電圧 $V_p=750$ V において測定した際に、センサに最初に到達したセンサ信号である。また、界面に与える粒子速度の振幅は、文献⁽⁵⁾に従って設定し、数値解析における時間および位置分解能は、それぞれ 0.2 ns, 1.5 μm とした。数値解析に使用した音響インピーダンス等のパラメータを表 1⁽⁶⁾⁽⁷⁾に示す。

図 2(a), (b), (c)と図 1(b), (d), (f)では、それぞれ数値解析の結果は測定結果にほぼ一致している。つまり、センサ信号の測定結果は、金属層となる銅板があることにより大きく異なるが、印加電圧に応じて高分子層の表面に蓄積する電荷は、Type A～C のいずれの場合も同じであることを示している。

次に、試料の各界面のセンサ信号の大きさについて、数値解析ではなく、文献(6)に示される理論式による解析的方法によって考察する。

Type A～C において、PET 両側の界面のうち LE 側の界面位置($i=L$)および UE 側の界面位置($i=U$)に、パルス電界によって加えられるクーロン力をそれぞれ $P(L)$, $P(U)$ とし、Type A～C における $i=L$, U でのセンサ信号を、それぞれ P_{SLA} , P_{SLB} , P_{SLC} , P_{SUA} , P_{SUB} , P_{SUC} とすると、その大きさは次のように表される⁽⁶⁾⁽⁸⁾。

$$P_{SLA} = \frac{Z_{Al}}{Z_{Al} + Z_{PET}} P(L) \quad \text{.....(6)}$$

$$P_{SLB} = \frac{2Z_{Al}}{Z_{Al} + Z_{Cu}} \frac{Z_{Cu}}{Z_{Cu} + Z_{PET}} P(L) \quad \text{.....(7)}$$

$$P_{SLC} = \frac{Z_{Al}}{Z_{Al} + Z_{PET}} P(L) \quad \text{.....(8)}$$

$$P_{SUA} = \frac{2Z_{Al}}{Z_{Al} + Z_{PET}} \frac{Z_{PET}}{Z_{PET} + Z_{semi}} P(U) \quad \text{.....(9)}$$

$$P_{SUB} = \frac{2Z_{Al}}{Z_{Al} + Z_{Cu}} \frac{2Z_{Cu}}{Z_{Cu} + Z_{PET}} \frac{Z_{PET}}{Z_{PET} + Z_{semi}} P(U) \quad \text{.....(10)}$$

$$P_{SUC} = \frac{2Z_{Al}}{Z_{Al} + Z_{PET}} \frac{Z_{PET}}{Z_{PET} + Z_{Cu}} P(U) \quad \text{.....(11)}$$

ここで、 Z_{Al} , Z_{PET} , Z_{Cu} , Z_{semi} : Al, PET, Cu, Semi-con の音響インピーダンスである。

(6)～(11)式に表 1 の値を代入し、Type A～C の測定におい

て、電荷は PET 界面にのみ蓄積されその大きさが等しいとすると、 $|P(L)|$, $|P(U)|$ はすべて等しくなるから、Type A～C におけるセンサ信号の比は、

$$P_{SLA} : P_{SLB} : P_{SLC} : P_{SUA} : P_{SUB} : P_{SUC} \\ = -1 : -0.594 : -1 : 1 : 0.594 : 0.132 \quad \text{.....(12)}$$

となる。図 1, 図 2 を見ると、どちらもほぼ(12)式を満たしている。つまり、銅板を有する金属 - 高分子複合材料の空

(a) Type A

(b) Type B

(c) Type C

図 2 数値解析結果

Fig. 2. Simulation results.

図 3 パルス波形 (インパルス応答)

Fig. 3. Pulsed wave (Impulse response).

表 1 試料および電極の音響インピーダンス

Table 1. Acoustic impedance of samples and electrodes.

Materials	Acoustic impedance: Z [kg/m ² /s]	Density: ρ [kg/m ³]	Sound velocity: c [m/s]
Cu	41.1×10^6	7659	5366
Semi-con	3×10^6	1500	2000
PET	2.8×10^6	1240	2258
Al-electrode	15×10^6	2500	6000

間電荷分布を測定する場合、センサ信号の大きさがそのまま空間電荷分布に比例するとは限らないということになる。また、理論式による解析結果と数値解析の結果は一致しており、数値解析が正しく行われていることもわかる。

次に、銅板の影響が特徴的な Type B の結果 (図 1(d), 図 2(b)) について考察する。図 4 は、Type B において数値解析を行った際の、音波の発生、伝搬の様子を示したものである。図 4(a) はセンサ信号、(b) は圧力(音波)の分布であり、圧力の極性と大きさは濃淡により示している。なお、図 4(b) では、 $x=0$ mm がセンサ位置に相当し、図の最上部(time=0) で発生した音波が時間の経過とともに伝搬していく過程を示している。

図 4 中の③、④より、センサ信号の①、②の位置に現れた信号は、PEA 法でのパルス電界印加により PET の両界面で発生した音波が、LE/Cu 界面および Cu/PET 界面で反射を繰り返した反射波によるもので、空間電荷分布に相当するものではないことがわかる。

以上より、PET と銅板を組み合わせた金属 - 高分子複合材料の空間電荷分布を測定した場合、振幅の変化や、電荷のない位置での音波信号の観測など、測定誤差が生じることが数値解析により確認された。また、数値解析により、実際の空間電荷分布を推定することが理論上可能であると考えられる。しかし、その方法については現在検討中であり、今後の課題である。

〈4・2〉 板の厚さについての考察 測定結果および数値解析結果から、銅板によって、電荷の存在しない位置で音波が観測されることがわかった。ここでは、銅板の厚さの影響について、数値解析により考察を行った。

図 4 数値解析における音波の発生と伝搬

Fig. 4. Pressure wave generation and propagation in simulation.

図 5(a)~(c)は、図 1(c)の Type B において、銅板の厚さをそれぞれ 0.1, 0.05, 0.025 mm とし、数値解析を行った結果である。図 5(a), (b)より、銅板の厚さを変えると反射波の周期が変化し、(b)における反射波の周期は(a)の約 2 分の 1 になっていることがわかる。さらに厚さを薄くした(c)では、反射波が PET の両界面の音波に吸収され、反射波はほとんど確認できなくなっている。

そこで、このような銅板による誤差と銅板の厚さとの関係を調査するため、数値解析により、銅板を挿入した場合 (Type B) のセンサ信号($p(t)$)を銅板の厚さを変化させて計算し、PET のみの場合 (Type A) のセンサ信号($p_0(t)$)を基準値とした誤差 E を次式により求めた。

$$E = \sqrt{\frac{\int (p(t) - p_0(t))^2 dt}{\int p_0(t)^2 dt}} \times 100[\%] \quad \text{.....(13)}$$

図 6 にパルス幅 PW をそれぞれ 0.01 mm, 0.02 mm, 0.03 mm としたときの結果を示す。図 6 の横軸は銅板の厚さ d [mm], 縦軸は誤差 E [%] である。図 6 より、銅板の厚さがパルス幅

図 5 銅板の厚さの違いによる比較 (数値解析結果)

Fig. 5. Comparison by thickness of Cu (Simulation results).

図 6 銅板の厚さの違いによる誤差 (数値解析結果)

Fig. 6. Errors by thickness of Cu (Simulation results).

図7 接着層の影響 (測定結果)

Fig. 7. The influence of adhesive layer (Experimental result).

PW の 1/2, 1/3, 1/10 のとき, 誤差はそれぞれ 10 %, 5 %, 1 % 程度となることがわかる。よって, 蒸着電極のように数百 Å m 程度の厚さの銅板であれば, 測定結果にはほとんど影響はないと考えられる。

〈4・3〉 接着剤の影響 これまでの測定, 数値解析では, 銅板の影響のみに着目するため, 銅板に塗布されていた接着剤を除去し, 銅板と PET の 2 層による金属 - 高分子複合材料について考察を行った。しかし, 実際にはプリント基板のように, 金属層は接着剤などにより接着されている場合があり, この接着層による影響も考慮しなければならない。そこで, 接着層が測定結果に及ぼす影響について実験により調査を行った。

図 1(e) の Type C において, 接着層の影響をより明確に観測するため, 図 1(f) の場合より薄い 0.21 mm の PET を使用し, あらかじめ塗布された接着剤によって銅板を接着して測定した。その結果を図 6 に示す。ただし, 直流印加電圧, パルス電圧は, 直流電界, パルス電界が図 1(f) の場合と等しくなるよう, それぞれ 2.1 kV, 250 V に設定した。接着層の影響がなければ, 減衰量の違いはあるものの, 図 7 と図 1(f) は同様の結果が得られるはずである。しかし, 図 7 を見ると, 図中○印部分のように, 図 1(f) では観測されていない負極性の信号が観測されている。

このように, 金属と高分子の間にある接着層によって, 金属層による影響以外にも測定誤差を生じる場合があり, 金属 - 高分子複合材料の測定結果を分析する際には, 接着層による影響も考慮する必要があると考えられる。

5. まとめ

高分子材料は, 金属層を有する複合材料として使用される場合がある。一方, 誘電体を評価する方法として, パルス静電応力(PEA)法による空間電荷分布測定が広く利用されている。しかし, このような複合材料の場合, 金属と高分子の音響的な性質の違いから測定誤差が生じるため, 空間電荷分布を正確に測定することが難しい。

そこで, 金属層の影響によって生じた測定誤差について考察するため, ポリエチレンテレフタレート(PET)と銅板の複合材料を被測定試料とした場合の測定結果について, 音波の発生と伝搬を考慮した数値解析モデルを適用し, 銅板の空間電荷分布測定結果への影響について調査を行った。その結果, 以下のことがわかった。

(1) PET 内の空間電荷分布は同じでも, 銅板の存在により, PEA 測定装置のセンサが検出する音波信号(センサ信号)は影響を受ける。

(2) (1)において, 銅板の PEA 測定電極間の位置により, センサ信号は影響の受け方が異なる。

(3) 数値解析により, 銅板の厚さの影響について調査を行い, PEA 測定装置のパルス幅に相当する厚さよりも銅板が薄い場合, 信号の振幅は別として, センサ波形には銅板の影響は現れず, 更にパルス幅の 1/10 以下の厚さであれば, 誤差はほとんどなくなることが確認された。

(4) 金属と高分子の間に接着層がある場合, センサ信号に接着層の影響が現れる場合があることが実験的に明らかになった。

なお, 本研究の一部は, 文部科学省「科学研究費・基礎研究(C)」の援助により行われた。

(平成 14 年 12 月 27 日受付, 平成 15 年 4 月 25 日再受付)

文 献

- (1) T. Maeno, H. Kushibe, T. Takada, and C. M. Cooke : "Pulsed electroacoustic method for the measurement of volume charges in E-beam irradiated PMMA", CEIDP Annual Report, pp. 389-393 (1985)
- (2) M. Wadamori, M. Fukuma, M. Nagao, N. Hozumi, M. Kosaki, and Y. Fukui : "Numerical Analysis of Acoustic Wave Generation and Propagation on PEA Method", Proc. of 2001 International Symposium on Electrical Insulating Materials, F-1, pp. 403-406 (2001)
- (3) M. Wadamori, M. Fukuma, M. Nagao, and Y. Fukui : "Numerical Analysis on Space Charge Measurement in 2-Layer Dielectrics on PEA Method", Proc. of the 2002 IEICE General Conference, A-11-1, p.251(2002) (in Japanese)
和田守美穂・福岡眞澄・長尾雅行・副井 裕 : 「PEA 法による 2 層誘電体の空間電荷分布測定における数値解析」, 平成 14 年電子情報通信学会総合大会, 基礎境界, A-11-1, p.251 (2002)
- (4) M.A. Morgan : Finite Element and Finite Difference Method in Electromagnetic Scattering, Elsevier Science, New York (1990)
- (5) M. Wadamori, M. Fukuma, M. Nagao, Y. Fukui, and T. Maeno : "Proposal of Numerical Analysis Model of Acoustic Wave Propagation and Generation on PEA Method", IEEJ Trans. FM, Vol.123-A, No.7, pp.693-698 (2003-7) (in Japanese)
和田守美穂・福岡眞澄・長尾雅行・副井 裕・前野 恭 : 「PEA 法における音波の発生と伝搬に関する数値解析モデルの提案」, 電学論 A, 123, 7, pp.693-698 (2003-7)
- (6) H. Miyake, Y. Tanaka, T. Takada, and M. Hanai : "Characteristic of Space Charge Distribution under DC Stress in Glass Materials", CEIDP Annual Report, pp. 128-131 (2000)
- (7) 島川正憲 : 超音波工学—理論と実際, p.14, 初版, 工業調査会 (1975)
- (8) T. Maeno : "Pressure Wave Generation and Propagation of PEA Technique", Proc. of 2000 Annual Conference of Fundamentals and Materials Society, IEE Japan, 1-10, pp. 41-46 (2000) (in Japanese)
前野 恭 : 「パルス静電応力法における圧力波発生と伝搬」, 平成 12 年電気学会基礎・材料・共通部門大会, 1-10, pp. 41-46 (2000)

和田守 美 穂

(正員) 1971 年 7 月 14 日生。1994 年 3 月横浜国立大学工学部電子情報工学科卒業。同年 4 月松江工業高等専門学校・情報工学科助手, 現在に至る。現在, 主としてデジタル信号処理の研究に従事。電子情報通信学会会員。

福間 眞澄

(正員) 1960年10月29日生。1985年3月豊橋技術科学大学電気電子工学専攻修士課程修了。同年4月住友電気工業(株)入社。1990年9月松江工業高等専門学校・電気工学科講師, 1994年7月助教授, 2002年4月教授, 現在に至る。博士(工学)。主として, 電気絶縁材料の研究に従事。静電気学会会員。

副井 裕

(正員) 1941年4月29日生。1966年3月大阪府立大学大学院工学研究科電気工学専攻修士課程修了。1966年4月鳥取大学工学部電気工学科助手, 1981年5月同教授。現在, 電気電子工学科教授。アナログ及びデジタル信号処理, 電子回路の研究に従事。工学博士。電子情報通信学会, IEEE 会員。

長尾 雅行

(正員) 1950年4月16日生。1978年3月名古屋大学大学院博士課程修了。以後, 同大学を経て, 1980年4月豊橋技術科学大学・電気電子工学系講師, 1985年4月助教授, 1998年4月教授, 現在に至る。工学博士。主として, 高分子の高電界電気物性, 絶縁劣化現象に関する研究に従事。1991年電気学会論文賞受賞。応用物理学会, IEEE, CIGRE, 低温工学協会会員。

前野 恭

(正員) 1957年8月28日生。1989年3月武蔵工業大学大学院工学研究科電気工学専攻博士課程修了。現在, 独立行政法人通信総合研究所電磁波計測部門ライダーグループ所属。工学博士。主として誘電体中の空間電荷分布, 電界分布の計測及びレーザー応用研究に従事。1990年電気学会論文賞受賞, 1996年電気学会進歩賞, 1997年静電気学会進歩賞受賞。1999年より武蔵工業大学機械システム工学科客員教授。