複合絶縁界面における電荷の振動

正員 穂 積 直 裕 (電力中研)

正員 武 田 敏 尚 (電力中研)

正員 鈴 木 寛 (電力中研)

正員 岡 本 達 希 (電力中研)

Charge Oscillation at the Interface in the Multi-layer Insulation

Naohiro Hozumi, Member, Toshinao Takeda, Member, Hiroshi Suzuki Member, & Tatsuki Okamoto, Member,
(Central Research Institute of Electric Power Industry)

Abstract

This paper deals with the charge accumulation and decay at the interface between low-density polyethylene (LDPE) and ethylene-vinylacetate copolymer (EVA). LDPE-EVA and LDPE-EVA-LDPE sheet specimens with the thickness of 0.2-0.3 mm were subjected to dc voltages. Stable interfacial charges were formed when the average stress was as low as 0.2-0.75 MV/cm. When the average field was as high as 1MV/cm, an oscillation accompanied by periodical generation of charge packets was observed. The charge packet stood up at the EVA/LDPE interface, and then, in many cases, moved toward the counter electrode. The specimens charged with higher average field lost their charges more rapidly than those charged with lower average field. It was suggested that carriers excited under high field affect on the decay of the charges.

キーワード: 複合絶縁、界面現象、空間電荷、ポリエチレン、エチレン・酢酸ビニル共重合体
(multi-layer insulation, interfacial phenomena, space charge, polyethylene, etylene-vinylacetate copolymer)

1. はじめに

異種の絶縁体を熱融着などの方法ではり合わせ、電圧を印加すると界面に電荷が現れる。この現象は古くから Maxwell-Wagner分極として知られており⁽¹⁾、実用絶縁系における電界解析などもこのモデルを使うことが多い。Maxwell-Wagner分極のモデルでは、絶縁体の特性を記述するパラメータとして誘電率および導電率が用いられているが、実際には同一絶縁体であっても局所電界、トラップ密度およびそれらの関数として与えられるキャリア密度、移動度の変化に対応して導電率が時間的、空間的に変化する。

る。このため、特に高電界においては、Maxwell-Wagner分極のモデルが必ずしも適用できるとは限らない。

一方、複合絶縁体界面では絶縁特性の違いにより電荷が蓄積するためキャリアの動きが把握しやすく、その電

図1 試料の概形図。

Fig.1 Structure of the specimens.

図2 空間電荷測定装置概略図。

Fig.2 Schematic diagram of the measurement cell.

荷挙動を観測することにより、界面の両側の絶縁体の優劣など、特性の違いをより明確に比較できる可能性がある。単一の絶縁体に電圧を印加した場合、絶縁体中を移動したキャリアは通常電極で電荷交換し、消滅するため、電荷挙動を測定しても、キャリアの動きを正確に把握できないことが多い。

これらを含んだ観点から、複合絶縁系の電荷挙動について研究が行われてきたが^{2,4)}、従来の研究では平均電界が低く、広範囲にわたる電界下での挙動は不明であった。そこで低密度ポリエチレン(LDPE)とエチレン-酢酸ビニル共重合体(EVA)を融着させた試料に平均 1.5 MV/cm 程度までの電界を与え、電荷挙動の観測を行った。

図3 LDPE-EVA 2枚重ね試料に正負 5 kV から 30 kV までを印加したときの空間電荷分布の時間変化。

Fig. 3 Transient space charge profiles in the LDPE-EVA double layer specimen under DC voltages.

2. 実験方法

図1に試料の形状を示す。厚さ約 $100\mu\text{m}$ のLDPEおよびEVA(酢酸ビニル10%)のシート試料を 100°C で熱融着し、複合絶縁試料を作成した。LDPE-EVA 2枚重ねおよびLDPE-EVA-LDPE 3枚重ねの2種類を準備した。試料厚はそれぞれ $200\mu\text{m}$ および $300\mu\text{m}$ である。

試料に直流電圧を印加し、パルス静電応力法⁽⁵⁾で内部の空間電荷の経時変化を観測した。図2に測定装置の概略を示す。高電圧を印加するために全長約1 mの気中末端を用いるとともに、試料と末端下部の間に厚さ約1 mmの絶縁ゴムシートを挟んで沿面放電を防止している。絶縁ゴムシート中央部には直径約10 mmの導電性ゴムがモールドされており、これを介して試料に電圧が印加される。気中末端パイプの下部にはパルス電圧印加用の電極が巻かれており、端末パイプが結合コンデンサとして機能している。測定は常温で行った。印加電圧の極性は測定装置の「上部電極」の極性に一致させた。

3. 実験結果

3-1 LDPE-EVA 2枚重ね試料

図3は、LDPE-EVA 2枚重ね試料に正負5 kVから30 kVまでを印加したときの空間電荷分布の時間変化である。図中0~0.1 mmまでがLDPE、0.1~0.2 mmまでがEVAであり、0 mmの位置に下部電極、0.2 mmの位置に上部電極がある。

図3(a)は+5 kV(平均電界 0.25 MV/cm)を印加したときの模様であり、電圧印加後LDPE-EVA界面に安定な正の電荷が蓄積する。図3(d)に見られるごとく、-5 kVを印加した場合には、同様に界面に負の安定な電荷が現れる。+15 kVおよび-15 kV印加時(平均電界 0.75 MV/cm)にも同様の挙動が観測された。

図4 LDPE-EVA 2枚重ね試料に正負5 kVを印加したときの空間電荷分布。

Fig. 4 Space charge profiles when $\pm 5\text{ kV}$ were applied to the "upper electrode" of the LDPE-EVA double-layer specimen.

図4は、この試料に正および負5 kVを印加したときの空間電荷分布を比較したものである。いずれも界面付近にはEVA側の電極と同極性の電荷が現れる。電荷の大きさは時間とともに増加し、安定する傾向を示す。界面付近

図5 LDPE-EVA-LDPE 3枚重ね試料に+5 kVから+45 kVまでを印加したときの空間電荷分布の時間変化。

Fig. 5 Transient space charge profiles in the LDPE-EVA-LDPE triple layer specimen under DC voltages.

の電荷のピーク位置は、時間とともにLDPE側に浸入する⁽⁴⁾。その浸入深さは正の電荷に比べて負の電荷の方が深くなっている。

図3(b)は、同じ試料に+20 kV (平均電界1 MV/cm) 印加したときの空間電荷分布の時間変化である。EVA内部で塊状電荷のピークが発生、移動し、界面で立ち上がる。LDPE側に入ると減衰、消滅している。この繰り返しにより、絶縁体内で電荷の振動が生じる。

図3(c)は同じ試料に+30 kV (平均電界 1.5 MV/cm) を印加したときの空間電荷分布の時間変化である。+20 kV 印加時と同様電荷の振動が生じているが、電圧印加後界面付近に現れた正の電荷はLDPE側に浸入し、塊状電荷となってピークの形を保ちながら負極側に移動し、消滅している。電荷のピークは界面で一旦立ち上がり、移動するにつれて小さくなる傾向を示す。

図3(e)は-20 kV印加時の様子である。負の電荷ピークの界面における立ち上がりとピークの移動は正電荷の場合ほど顕著ではなく、負の電荷が界面からLDPE側に浸入しやすいことを示唆している。EVA側が全体的に負に帯電していることから、正キャリアが負極に達し消滅した後に残留する負の電荷が正キャリアに比べて動きにくいことを示唆している。図3(f)は-30 kV印加時の様子である。-20 kV印加時と同様、やや不安定な挙動を示すが、電荷ピークの移動はわかりにくい。

3-2 LDPE-EVA-LDPE 3枚重ね試料の実験結果

図5にLDPE-EVA-LDPE 3枚重ね試料に+5 kVから+45 kVまでを印加したときの空間電荷分布を示す。0~0.1 mmまでがLDPE、0.1~0.2 mmまでがEVA、0.2~0.3 mmがLDPEである。0 mmの位置に下部電極、0.3 mmの位置に上部電極がある。図5(a)は+5 kV (平均電界 0.17 MV/cm) 印加時の模様であり、界面付近に電荷が現れ、時間とともに大きくなり安定する。+15 kV (平均電界 0.5

図6 LDPE-EVA-LDPE 3枚重ね試料に+5kVを印加したときの空間電荷分布。

Fig. 6 Space charge profiles when +5 kV were applied to the "upper electrode" of the LDPE-EVA-LDPE triple layer specimen.

MV/cm) 印加時もほぼ同様の挙動が観測された。

図6は、+5 kV印加時の空間電荷分布を示したものである。左側の界面付近が正、右側の界面付近は負に帯電している。負のピークは正のピークに比較してブロードである。正、負の電荷ピーク位置とも時間とともにLDPE側へ浸入するが、2枚重ねの場合と同様、負の電荷がより深く浸入するように見える。

図5(b)は+30 kV (平均電界 1.5 MV/cm) 印加時の空間電荷の時間変化である。正の電荷ピークがEVA-LDPE界面に現れた後、LDPE側に移動し、陰極に達して消滅する。このため、2枚重ねの場合と同様電荷の振動が生じる。EVAの陽極側界面付近には負の電荷が現れるが、正の電荷ピークが明らかに陰極に向かって移動するのに比較し、負の電荷ピークの移動は顕著ではない。図5(c)は+45 kV (平均電界 1.5 MV/cm) 印加時の様子である。+30 kV印加時とほぼ同様の挙動を示すが、LDPE-EVA界面での正の電荷の立ち上がりが顕著に観測されている。

3-3 LDPE-EVA-LDPE 界面の電荷の減衰

図7に3枚重ね試料におけるLDPE-EVA界面 (陰極に近い側) 付近に現れる正の電荷ピークの高さの時間変化を示す。電圧印加後約6分後に試料を短絡している。ピーク高さは+5 kVおよび+15 kV印加時には単調に増加し安定するが、+30 kVおよび+45 kV印加時には振動する。試料を短絡するとピークは減衰する。減衰の速度は5 kV印加後の場合が最も遅く、短絡前の印加電圧が高いほど速くなる傾向を示す。

図7 LDPE-EVA-LDPE 3枚重ね試料に+5kVから+45kVまでを印加し、短絡したときにLDPE-EVA界面 (陰極に近い側) 付近に現れる電荷ピークの高さの時間変化。

Fig. 7 Transition of the height of positive charge peak in the LDPE-EVA-LDPE triple layer specimen during and after the voltage application.

図8は、同じ構成の試料に +15 kVを印加し短絡した前後の正の界面電荷ピークの時間変化である。同図には短絡直後の空間電荷分布の時間変化を付記した。+15 kV印加後に短絡すると、電荷はゆっくりと減衰し、(a) のように6分経過後も電圧印加中の 20 %のピーク高さを保っている。

+30 kV 6分間印加後短絡すると (b) に示すように電荷は急速に減衰するが、6分間短絡の後再び +15 kV 6分間印加し、さらに短絡した場合の電荷 ((c)に示す) は、(a) と同様安定している。一方、+30 kV 6分間印加直後に2分間だけ電圧を +15 kVに保った後短絡すると、(d) に見

図8 LDPE-EVA-LDPE 3枚重ね試料に+15kVを印加し、短絡したときにLDPE-EVA界面(陰極に近い側)付近に現れる電荷ピークの高さの時間変化と、短絡時の空間電荷分布の時間変化。

Fig. 8 Transition of the peak height of positive charge in the LDPE-EVA-LDPE triple-layer specimen during and after the application of +15 kV, and transient space charge profiles after short circuiting.

られるように30秒以内にほとんどの界面電荷が消滅する。このことから、高電界で生じた電荷の減衰は速いが、6分程度の短絡期間の後に低電界で形成された電荷は安定していることがわかる。

4. 考察

1 MV/cm に満たない低電界で形成される LDPE-EVA 複合絶縁系に形成される電荷については過去にいくつかの報告を見ることができ、その挙動は本報告で観測された結果とほぼ同様である^(2,4)。1 MV/cm 以上で発生する振動をともなう塊状電荷については、架橋ポリエチレンや不純物を含むポリエチレンで最近観測されているが^(6,8)、複合絶縁系で観測した例は筆者らの知る限り本報告が初めてと考えられる。しかしながら、筆者らは不純物が偏在するときに振動をともなう塊状電荷が発生しやすいことを報告しており⁽⁷⁾、界面を境として物性が極端に変化する複合絶縁系で同様の現象が起りやすくなることは想像に難くない。

高電界下で発生する振動性の塊状電荷発生メカニズムは十分に解明されているとは言えないが、筆者らは電荷注入のヒステリシス⁽⁶⁾、または、絶縁体内での解離と電界緩和の時間遅れ⁽⁸⁾を考慮し、数値計算で現象を再現している。また兼子らのモデルではバルク内で高電界によって励起されるキャリアのとり得る3つの準位を仮定し、バルク内を移動する塊状電荷を再現している⁽⁹⁾。いずれのモデルにおいても、電界の上昇にともない急激にキャリアが励起されることが、塊状電荷を発生しやすい条件となっている。

一方、形成された電荷ピークの減衰過程の測定結果は「高電界で蓄積した電荷ほど速く減衰する」ことを示している。同様の現象はコロナ帯電された高分子フィルムの電位減衰過程にも見られ、帯電電圧が高いほど減衰速

度が大きくなる「交差現象」として観測されている^(10,11)。この説明として帯電電圧が高くなるとキャリアが表面から絶縁体内部に浸透し、その結果絶縁体内部を通じた電荷の減衰が速くなるという過程^(10,12)、高電界を経験した試料ではキャリア移動の障壁が下がるため帯電電荷の減衰が速くなるという過程⁽¹¹⁾が考えられている。

EVAの電気伝導率はLDPEに比較して2桁程度高いことから⁽¹³⁾、試料中に形成された電荷の減衰は主としてEVA側の状態で決定されると考えられる。そこで、厚さ 50 μm のEVAフィルム (有効電極面積 200 cm^2) に直流電圧を印加したときに試料中を流れる電流を測定した。結果を図9に示す。1 kV (平均電界 0.2 MV/cm) を印加すると、吸収電流が流れた後約 2×10^{-9} A の値に安定する。電圧を5 kV (平均電界 1 MV/cm) にすると電流は約30倍の 6×10^{-8} Aまで増大する。その後再び電圧を 1 kVに低下させると、通常の過渡電流であれば、負の逆吸収電流が流れ、時間とともにゼロに近づき、1 kV印加時の伝導電流の値に収束するはずであるが、この測定例では逆吸収電流減衰後の電流増加が観測され、 3×10^{-8} Aまで増大する。その後10分程度の時間をかけて最初の 1 kV印加時の伝導電流である約 2×10^{-9} A に収束する。このことから、1 MV/cm 程度の高電界を経験したEVAフィルムは、その後10分程度の間、経験していないものに比べてconductiveな状態を保つことがわかる。

本報告の実験例では、高電界で振動性の塊状電荷が発生していること、観測される塊状電荷は絶縁体内のそれぞれの位置における正負電荷の差であることなどから、高電界経験後には観測される塊状電荷の量に比較して多くの励起キャリアが残留しているものと考えられる。

塊状電荷として遍在する電荷は、試料短絡後の内部電界の変化にともない、周辺のキャリアによって中和されると考えると、高電界を経験した試料中の電荷の減衰が速くなることを定性的に説明できる。高電界で励起されたキャリアは10分程度で再結合あるいはトラップされると仮定すると、その後再び低電界を印加したときに形成された電荷は試料短絡後も中和されにくく、安定に残留できるものと考えられる。これらは、電流測定の結果からも矛盾なく説明できる。

試料内部に発生するキャリアが注入キャリアであるか解離キャリアであるかは本報告の実験だけで推定することが困難であるが、いずれにせよ 1 MV/cm程度の高電界の下で励起されたキャリアが、電界低下後も絶縁体内に残留して伝導に寄与し続けると考えると、実験結果を矛盾なく説明できる。

以上より、振動性の塊状電荷を発生するような高電界を経験した直後の試料では励起されたキャリアが豊富な状態となっており、キャリアの消滅またはトラッピングには10分程度の時間を要することが示唆される。

図9 厚さ50 μm のEVAフィルムに直流電圧を印加したときの電流の時間変化。

Fig. 9 Transient current when DC voltages were applied to a 50 μm thick EVA film.

5. まとめ

実用絶縁系にしばしば含まれる「異種絶縁体界面」における電荷挙動を解明するため、モデルとして作成したLDPE-EVAおよびLDPE-EVA-LDPE融着試料に直流電圧を印加し、空間電荷の挙動を観測した。主な結果を以下に示す。

- (1) 0.2-0.75 MV/cm程度の低電界下では界面付近に安定な電荷が蓄積する。界面の電荷の極性は、LDPE-EVA 2枚重ね試料ではEVA側の電極の極性に一致し、LDPE-EVA-LDPE 3枚重ね試料ではそれぞれの界面に近い側の電極と逆の極性になる。時間の経過とともに界面の電荷ピークがLDPE側に浸入する。浸入の深さは正の電荷より負の電荷の方が深い。
- (2) 1 MV/cm程度以上の高電界下では塊状電荷が発生、移動し、絶縁体内で電荷の振動がおりやすい。塊状電荷のピークは界面付近で立ち上がり、LDPE内部に浸入、移動する。
- (3) 低電界下で形成される界面付近の電荷は短絡後も安定に残留するが、高電界下で形成される電荷は短絡後急速に減衰する。
- (4) 塊状電荷観測および伝導電流の測定結果から、高電界を経験した試料ではキャリアが豊富になり、電気伝導度が大きくなるため、電荷が速く減衰するものと考えられる。
- (5) 短絡後一定時間経過した試料に低電界を印加した後に残留する電荷は安定であることなどから、高電界で励起されたキャリアは10分程度で消滅またはトラップされ、伝導に寄与できなくなると考えられる。

謝辞

測定方法および解析に関しご指導いただいた、武蔵工業大学高田達雄教授に謝意を表します。

(平成11年10月18日受付)

文献

- (1) J.C.Maxwell: "A Treatise on Electricity & Magnetism", (Oxford University Press, Oxford, 1891).
- (2) N.Hozumi, T.Okamoto, T.Imajo: "Space Charge Accumulation and Decay at the Interface between Polyethylene and Ethylene-Vinylacetate Copolymer", Proc. 8th Int'l Symposium on High Voltage Engineering (ISH) (Yokohama, Japan), Vol.4 pp.115-118 (1993).
- (3) T.Tanaka & M.Uchiumi: "Charge Trapping in Interface of Laminated PE/EVA Dielectrics", 1997 Annu. Rep. Conf. Electr. Insul. & Dielectr. Phenomena (Minneapolis, USA), pp. 109-112 (1997).
- (4) 伊藤、田中、高田、田中: 「LDPE/EVAラミネート界面の電荷蓄積・減衰特性」、電気学会誘電・絶縁材料研究会、DEI-99-30(1999).
- (5) Y.Li, M.Yasuda & T.Takada, "Pulsed Electroacoustic Method for Measurement of Charge Accumulation in Solid Dielectrics", IEEE Trans. on Dielec. & Electr. Insul., Vol.1, No.2, pp.188-195 (1994).
- (6) N.Hozumi, H.Suzuki, T.Okamoto, K.Watanabe & A.Watanabe: "Direct Observation of Time-dependent Space Charge Profiles in XLPE Cable under High Electric Field", IEEE Trans. on Electr. Insul., Vol. 1, 1068-1076 (1994).
- (7) N.Hozumi, T.Takeda, H.Suzuki, T.Okamoto: "Space Charge Behavior in XLPE Cable Insulation under 0.2-1.2MV/cm dc Fields", IEEE Trans on Dielectr. & Electr. Insul., Vol.5, No.1, pp.82-90 (1998).
- (8) H.Kon, Y.Suzuoki, T.Mizutani & N.Yoshifuji: "Packet-like Space Charge Behavior and Conduction in Polyethylene for Cable Insulation", Proc. 1995 Int'l Symp. on Electr. Insul. Materials, 243-246 (1995).
- (9) 兼子、鈴置、水谷: 「シミュレーションによるXLPE中のパケット状電荷の生成過程の検討」、電気学会第29回電気絶縁材料シンポジウム予稿集、X-3, pp.215-218 (1997).
- (10) 家田、沢、篠原: 「高分子表面電荷の減衰過程」、電気学会論文誌、Vol.88, No.6, pp.1107-1113 (1968).
- (11) 高田、中村、熊倉、堺、鳥山: 「部分放電により帯電したPETPフィルムの電流漸増現象の発生条件とその考察」、電気学会論文誌、Vol.92-A, No.9, pp.440-448 (1972).
- (12) H.J.Wintle: "Decay of Static Electrification by Conduction Process in Polyethylene", J. Appl. Phys., Vol.41, No.10, pp.4004-4007 (1970).
- (13) M.Ieda, G.X.Cai, Y.Suzuoki, T.Mizutani: "Effects of Polymer-Polymer Interfaces on Electrical Properties of Insulating Composites", Memories of the Faculty of Eng., Nagoya Univ., Vol.38, No.2, pp.137-182 (1986).

穂積直裕 (正員)

1957年4月2日生。83年3月早稲田大学大学院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。96年6月～98年6月中央電力協議会に出向。99年4月より豊橋技術科学大学電気電子工学系助教授。主として電気絶縁材料に関する研究に従事。工学博士。89, 99年電気学会論文賞。IEEE会員。

武田敏尚 (正員)

1969年10月29日生。94年3月早稲田大学大学院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。現在電力部主任研究員。主として電気絶縁材料に関する研究に従事。99年電気学会論文賞。

鈴木 寛 (正員)

1947年3月20日生。65年県立神奈川工業高等学校卒業。同年(財)超高压電力研究所入所。77年(財)電力中央研究所入所。現在電力部主任研究員。極低温・超伝導ケーブル、超高压ケーブルの電気絶縁・熱機械性能に関する研究に従事。88年電気学会進歩賞、99年論文賞。93年没沢賞。

岡本達希 (正員)

1951年9月21日生。76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。現在電力部上席研究員。98年4月より名古屋大学理工学研究センター寄付研究部門客員教授。主として電気絶縁材料に関する研究に従事。工学博士。83, 94, 99年電気学会論文賞。IEEE会員。