

$$Q(t) = \int I(t)dt$$

# 電流積分電荷法による絶縁材料の高圧誘電特性評価

Evaluation of Insulation Materials under High Voltage by Direct Current Integrated Charge Method

関口 洋逸\*  
Yoitsu Sekiguchi

高田 達雄  
Tatsuo Takada

三宅 弘晃  
Hiroaki Miyake

田中 康寛  
Yasuhiro Tanaka

直流送電や直流機器類の普及に伴い、直流印加時における誘電・絶縁材料の評価が重要性を増している。通常、これらの電気物性の評価は、それぞれ目的に応じた手法を用いて行われるが、ここに紹介する電流積分電荷法を用いると誘電率、空間電荷、電気伝導率と言った誘電・絶縁材料における主要な特性を簡便な手法で網羅的に把握することが可能である。ここでは、その原理といくつかの材料にて計測を行った結果をまとめた。

Due to the development and wide-spread use of high-voltage direct current (HVDC) transmission and its related equipment, the evaluation of the dielectric properties of insulation materials under HVDC has become important. While the evaluation of electric properties is generally carried out using different methods appropriate for their specific purposes, the authors have found a relatively simple technique that can simultaneously evaluate multiple dielectric properties of a material, such as permittivity, space charge behavior, and electrical conductivity, using the current integrated charge method. This paper describes the principle of the method and measurement results of low- and high-density polyethylene and polystyrene.

キーワード：誘電・絶縁材料、誘電率、空間電荷蓄積、電気伝導率、電流積分電荷法

## 1. 緒言

近年、高圧直流送電や直流機器類の需要拡大に伴い、直流電圧印加時における誘電・絶縁材料の評価の重要性は確実に高まっており、空間電荷現象や電気伝導現象について、これまで以上に考察を深める必要性が増している。これらの現象の鍵となるのが材料中を流れる微小電流である。方形波電圧の印加を考えると、誘電・絶縁材料における電流は、課電の初期における瞬時充電電流（電極と試料をコンデンサと見立てた時の充電電流）、空間電荷蓄積・移動に伴う吸収電流、定常状態に達した後の漏洩電流に分類され、通常はそれぞれの物理現象と対応した個別の測定手法により計測が行われる。例えば、課電による材料の劣化の前駆現象として重要な空間電荷蓄積挙動は、パルス静電応力法（PEA法）により1980年代から広く評価が行われている<sup>(1)</sup>。PEA法は蓄積電荷の位置情報がわかる優れた手法であるが、対象となるのは比較的移動速度の遅い電荷に限られており、動きの速い電荷や伝導現象には対応できない。

電流積分電荷法は、試料に対して直列に接続した測定コンデンサに、電流の積分値である電荷量（ $Q(t)$ ）を蓄積して測定・解析する手法である<sup>(2)</sup>。コンデンサを使用するため、全ての電流成分を網羅的に捕捉でき、また測定が簡便であるため、材料の誘電・絶縁特性を短時間で俯瞰的に把握するのに有効である<sup>(3),(4)</sup>。ここでは、電流積分電荷法について簡単に解説するとともに、いくつかのポリマー材料

に適用した結果を示した。また、最後に今後の考えられる展開についてまとめた。

## 2. 電流積分電荷法（DCIC-Q(t)法）

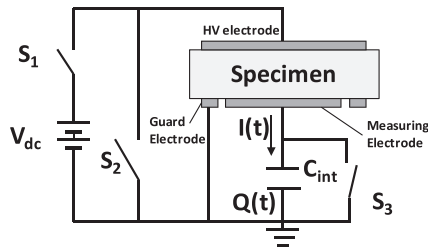
電流積分電荷法（以下、DCIC-Q(t)法と略）は、図1に示すように、試料と直列に接続した測定コンデンサに電流の積分値である電荷量 $Q(t)$ を蓄積して評価する方法である。方形波電圧を印加する場合、電流は物理現象によって分類され、式(1)に示すように表現される。

$$Q(t) = \int I(t)dt = Q_0 + \int I_{\text{abs}}(t)dt + \int I_{\text{cond}}(t)dt \quad \dots (1)$$

$$\text{但し、} Q_0 = \int I_{\text{disp}}(t)dt = C_s \cdot V_{\text{dc}}$$

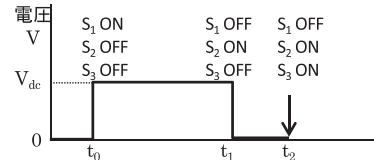
ここでは、静電容量 $C_s$ の試料に、電圧 $V_{\text{dc}}$ を印加する場合を考える。 $I_{\text{disp}}(t)$ は瞬時充電電流、 $I_{\text{abs}}(t)$ は吸収電流、 $I_{\text{cond}}(t)$ は漏洩電流を示し、それぞれ電極と試料をコンデンサとみなした時の充電、空間電荷蓄積・移動、物質の電気伝導率に応じた微小電流に対応する。従って、DCIC-Q(t)法によりこれらの電流を計測・解析することにより、通常、個別の手法により計測される誘電率、空間電荷、電気伝導率を、同時に計測することが可能である。以下に、それぞれの評価手法について記述する。

(a) 測定回路

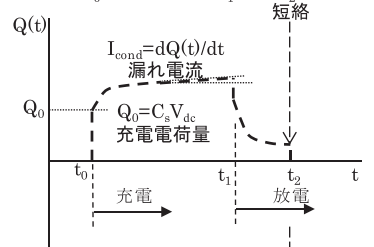


$V_{dc}$ : 印加電圧  
 $C_s$ : 試料の静電容量  
 $C_{int}$ : 測定コンデンサの静電容量  
 $Q_0$ :  $C_s \cdot V_{dc}$  で表わされる試料の充電電荷量

(b) 印加電圧



(c) Q(t)



(d) I(t)

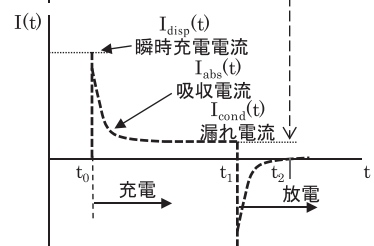


図1 測定回路(a)と方形波電圧印加時のQ(t)およびI(t)のイメージ ((b)~(d))

### (1) 静電容量、誘電率

方形波電圧印加時の立ち上がりの電圧を  $V_{dc}$ 、試料の静電容量を  $C_s$  とすると、 $V_{dc}$  により試料に蓄積する充電電荷量  $Q_0$  は、 $C_s \cdot V_{dc}$  で表わされる。従い、DCIC-Q(t) 法により  $Q_0$  を求めると、 $C_s$  が算出される。

$$Q_0 = C_s \cdot V_{dc} = \epsilon S / d \cdot V_{dc} = \epsilon S \cdot E_{dc} \quad \dots\dots\dots (2)$$

静的誘電率  $\epsilon$  は、電極面積  $S$  と試料厚さ  $d$  とを用いると  $C_s$  から算出することができる (式 (2))。

### (2) 空間電荷

空間電荷蓄積・移動の影響が現れる吸収電流の挙動から、空間電荷に関する情報を得ることが可能である。但し、DCIC-Q(t) 法にPEA法のように電荷分布の位置情報はなく、得られるのは電荷量の総量に関する情報である。電荷量の変化を定量的に求めるため、我々は電荷量比として時間  $t$  秒後における電荷量  $Q(t)$  と立ち上がり直後の電荷量  $Q_0$  の比  $Q(t)/Q_0$  を評価した。

$$\frac{Q(t)}{Q_0} = 1 + \frac{\Delta Q(t)}{Q_0} \quad \dots\dots\dots (3)$$

但し、 $\Delta Q(t) = Q(t) - Q_0 = \int I_{abs}(t) dt + \int I_{cond}(t) dt$  電荷量比  $Q(t)/Q_0$  が“1”であることは、電荷の注入・蓄積がないことを示す。

### (3) 電気伝導率

電荷量を時間で微分すると電流になる ( $dQ(t)/dt = I(t)$ ) ことから、実験で得られる  $Q(t)$  の時間依存性のグラフの定

常状態における傾きが漏洩電流を示す。漏洩電流から電気伝導率  $\kappa$  を求めることができる。ここで、 $J$  は電流密度、 $S$  は電極面積、 $d$  は試料の厚みである。

$$J(t) = \frac{1}{S} \cdot I(t) = \frac{1}{S} \cdot \frac{dQ}{dt} \quad \dots\dots\dots (4)$$

また、

$$J_{cond} = \kappa \cdot E = \kappa \cdot \frac{V_{dc}}{d} \quad \dots\dots\dots (5)$$

よって、

$$\kappa = \frac{d}{S} \cdot \frac{1}{V_{dc}} \cdot \frac{dQ}{dt} \quad \dots\dots\dots (6)$$

これらの物性値は、一回の計測から求めることもできるが、印加電界や測定温度を变量することにより電界依存性や温度依存性を求めると、その材料の誘電特性についてより俯瞰的な情報を入手することが可能である。

## 3. 実験

### 3-1 装置

実験には、エー・アンド・ディ社製電流積分計 (AD-9831)、松定プレジジョン製直流電源 (HMBR-30R0.4、max30kV、0.4mA) を使用した。

実験の手順は以下の通りである。まず、電流積分計によ

る計測は、課電開始から測定系の短絡に至る全過程で実施した。これにより、定常状態のみならず、充電・放電時の過渡現象における電流挙動も含めて評価することが可能となる。また、課電電圧は、試料の厚みで除した課電電界にて、2.5~100kV/mmの間の8水準とし、低電界側から順に電圧印加を行った。図2に示す測定系に試料をセットする。高圧側の電極はロゴスキータイプ、低圧側はガード電極を持つ二重電極としており、測定電極の有効径は65mmである。電圧印加は、図1(a)のS<sub>1</sub>のみをONの状態にして所定の電圧V<sub>dc</sub>までの昇圧時間を2秒とし、V<sub>dc</sub>で600秒保持する。続いてS<sub>1</sub>をOFF、S<sub>2</sub>をONにして電圧印加を停止して自然放電を300秒行う。その後、S<sub>2</sub>とS<sub>3</sub>とをONにして電流積分計を短絡して測定を終了する。この操作によりQ(t)は0に戻る。印加電圧を変える場合は、この状態から電圧印加を繰り返した。また、測定温度は常温と80℃の二通りとした。

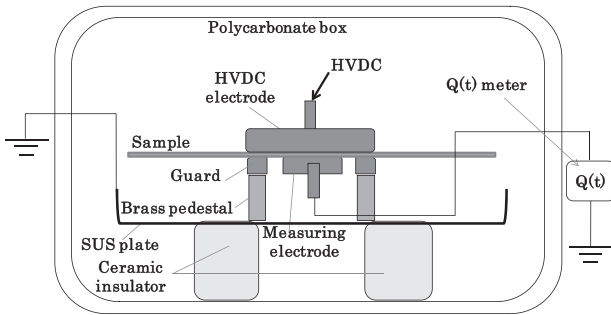


図2 試験電極の概要

### 3-2 試料

試料として、低密度および高密度ポリエチレン (LDPE、HDPE) とポリスチレン (PS) を使用した。LDPEおよびHDPEは、ともに無添加の市販グレードを選択し、添加材を処方せずに140~160℃にてロール混合機による均質化処理を行った後、0.2mm厚シートにプレス加工した。PSは市販の0.2mm厚シートを使用した。表1に、各材料の化学構造と代表的な物性として、25℃にて10Hzの振動モードで測定した動的粘弾性を示す。E<sub>r</sub>は貯蔵弾性率、E<sub>i</sub>は損失弾性率であり、tanδはその比である。LDPEのE<sub>r</sub>がHDPEやPSとして小さくなっているのは、LDPEが他と比較して柔軟であることを示している。

表1 各材料の化学構造と粘弾性

	化学構造	動的粘弾性 (25℃、10Hz)		
		E <sub>r</sub> [Pa]	E <sub>i</sub> [Pa]	tanδ
LDPE	$-(CH_2-CH_2)_n-$	4.0×10 <sup>8</sup>	4.7×10 <sup>7</sup>	0.12
HDPE		1.9×10 <sup>9</sup>	9.1×10 <sup>7</sup>	0.047
PS	$-(CH_2-CH)_n-$ 	3.3×10 <sup>9</sup>	5.9×10 <sup>7</sup>	0.018

### 4. 測定結果

常温および80℃にて測定したQ(t)曲線を材料別に図3に示す。図3では、比較を容易にするため、縦軸の縮尺を揃

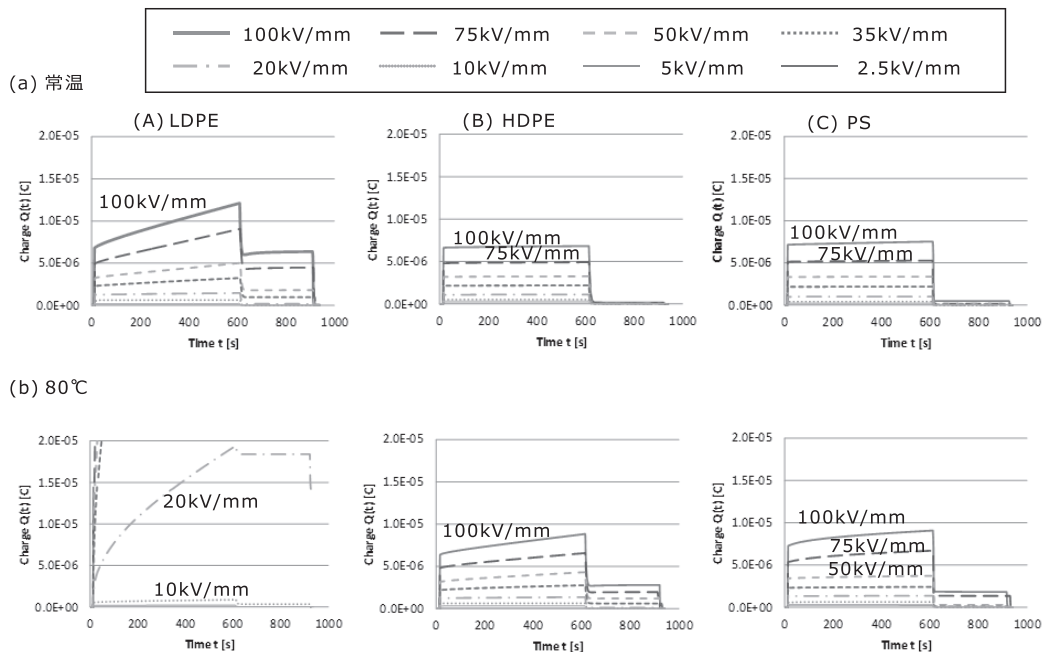


図3 各試料のQ(t)曲線 ((a) 常温、(b) 80℃)

えている。

図3を見ると、三種類の材料の特徴が顕著に現れていることがわかる。同じポリエチレンで基本的な化学構造が同じでありながら、LDPEとHDPEとはかなり異なる挙動を示す。即ち、LDPEは常温でも20kV/mmを超える辺りからQ(t)の時間変化が大きくなる（傾きが大きくなる）のに対し、HDPEの場合、常温では同様の傾向が見られない。80℃では、LDPEはさらにQ(t)の傾きが大きくなるが、HDPEではその変化は小さい。また、分子中に芳香環を含むPSは、80℃の高電界でややQ(t)の変化が見られるものの、温度および電界による差異は小さいと言える。

## 5. 考 察

### 5-1 誘電率と電気伝導率

これらのデータを基に、2項に記述した方法で、100kV/mm印加時における比誘電率 ( $\epsilon_r$ ) と電気伝導率 ( $\kappa$ ) を求めた。結果を表2に示す。80℃におけるLDPEの $\epsilon_r$ が非常に大きな値となっているのは、 $Q_0$ に、電荷移動に起因するいわゆる空間電荷分極の成分が含まれているためと考えられる。

### 5-2 空間電荷蓄積挙動

図4に、電荷量比 ( $t = 300$ 秒におけるQ(t)である $Q_{300}$ と、 $Q_0$ との比、 $Q_{300}/Q_0$ )の電界依存性を示す。(A)は常温、(B)は80℃のデータ、左側に全体像がわかるグラフ、

表2 各材料の比誘電率と電気伝導率 (100kV/mm印加)

		比誘電率 $\epsilon_r$	電気伝導率 $\kappa$ [S/m]
LDPE	常温	2.29	$2.41 \times 10^{-14}$
	80℃	4.91	$2.09 \times 10^{-12}$
HDPE	常温	2.24	$7.29 \times 10^{-16}$
	80℃	2.16	$1.09 \times 10^{-14}$
PS	常温	2.44	$1.79 \times 10^{-17}$
	80℃	2.50	$6.15 \times 10^{-15}$

右側に“1”近傍 (0.8~1.6) を拡大したグラフを示している。

常温では、LDPEの電荷量比が高電界で増加しているが、これは空間電荷蓄積を反映したものと考えられる<sup>(4)</sup>。HDPEとPSでは電荷量比がほぼ“1”でほとんど変化しない。これは、この温度、電界では両者の電荷蓄積が極めて少ないことを示している。また、電荷量比の印加電界依存性がわかるので、LDPEの場合は10kV/mmを超えると少量ながら電荷の注入が始まり、蓄積が進む様子が理解できる。

一方、80℃では、LDPEの電荷量比が電界の上昇とともに顕著に増加している。電荷量比は“2”を超えると伝導が支配的になるため、この条件下におけるLDPEでは電荷蓄積と言うよりも伝導が顕著に起こっていることがわかる。LDPEと比較すると、HDPEとPSの電荷量比は安定しているが、“1”近傍を拡大すると、図4(B)右に示すように、PS

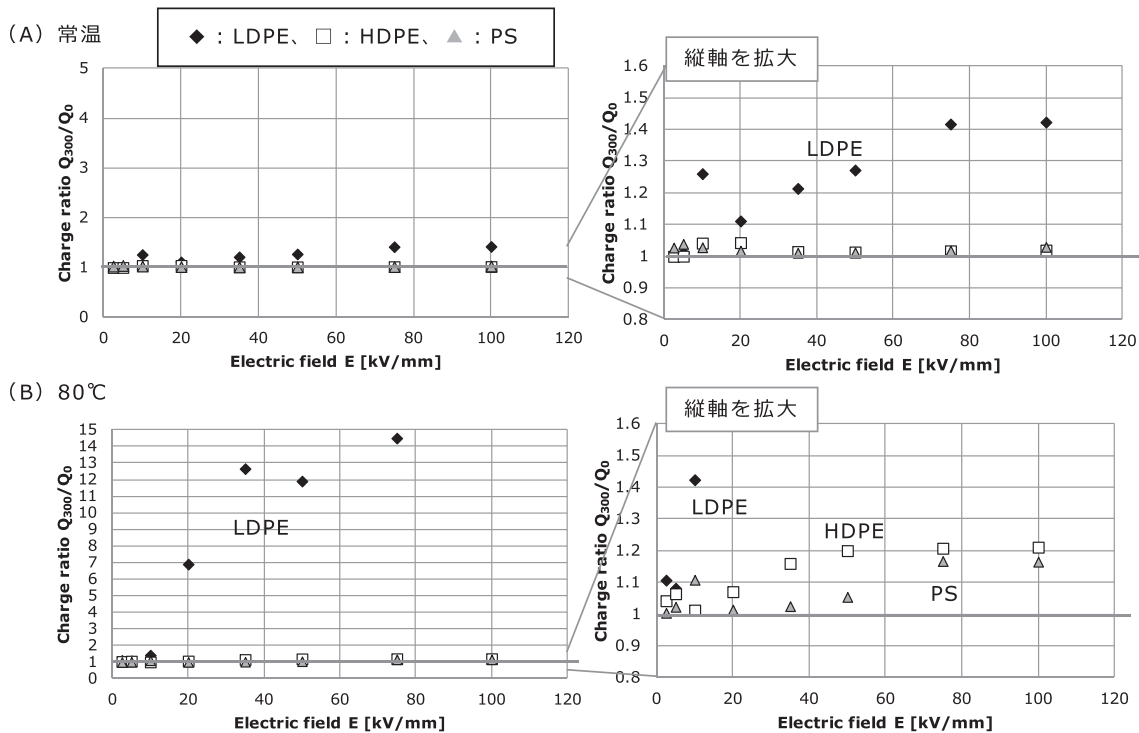


図4 電荷量比 $Q_{300}/Q_0$ の電界依存性

の電荷量比がより小さく、立ち上がりの電界が高いことがわかる。この相違点は電荷注入開始電界の違いが表れているためと考えられ、グラフから読み取った電荷注入開始電界は、HDPEで20kV/mm、PSで50kV/mmと見積もることができる。PSは分子中のモノマー単位毎に芳香環を持っており、これが電荷蓄積や伝導を阻害していると推定される<sup>(5)</sup>。

## 6. 結 言

電流積分電荷法を用い、低密度および高密度ポリエチレン (LDPE および HDPE) とポリスチレン (PS) について、 $Q(t)$  の評価を実施した。印加電圧の水準を2.5~100kV/mmの間に8水準取り、各条件にて電圧印加直前から積分計の短絡までの全電流成分を取り込み、解析を実施した。低電界では材料による差異はあまり見られないが、10kV/mmを超えると、常温でもLDPEには $Q(t)$ の上昇(時間に対する傾きの増加)が見られ、高温ではその傾向がさらに顕著となる。一方、PSは100kV/mmでも $Q(t)$ の上昇速度の大幅な上昇は見られず、また、同じポリエチレンでもHDPEではPSに近い挙動を示した。

今回、 $Q(t)$ のデータを解析して、誘電率、空間電荷蓄積挙動、電気伝導率について評価を実施した。電流積分電荷法は、簡便な計測技術で、種々の誘電・絶縁特性を評価できることから、電気絶縁材料のスクリーニング、状態変化計測や診断の手法として広く展開が期待できる。また、電極の形状を選ばずに計測が可能であるため、電線・ケーブル形状や半導体デバイスなどにも適用可能である。空間電荷計測に関して考えると、従来のPEA法では測定が困難であった動きの早い電荷の計測、薄肉試料、高温における計測にも対応が可能であり、表3に示すようにPEA法や微小電流計測などの従来の計測技術と組み合わせることにより補足的、俯瞰的に材料、現象の評価が可能となると考えられる。

表3 各計測手法の特徴

	微小電流計測	DCIC-Q(t)	PEA
空間電荷分布	×	×	◎
蓄積電荷量	×	◎	○
電気伝導率	◎	◎	×
誘電率	×	◎	×

◎ : well available, ○ : available, × : not available

## 参 考 文 献

- (1) T. Takada, "Acoustic and Optical Methods for Measuring Electric Charge Distribution in Dielectric," IEEE Trans. on DEI, Vol.6, No.5, pp.519-547 (1999)
- (2) 高田達雄、堺孝夫、鳥山四男、「高分子フィルム内の電荷分布の推定法」、電学論92-A, No.12, pp537-544 (1992)
- (3) 高田達雄、森琢磨、岩田知之、藤富寿之、小野泰貴、三宅弘晃、田中康寛、「電流積分電荷法による絶縁劣化診断法の提案」、電気学会 DEI/EWC 合同研究会、DEI-16-058、EW-16-013 (2016)
- (4) 関口洋逸、高田達雄、三宅弘晃、田中康寛、「電流積分電荷法によるポリマーの誘電特性の把握に関する検討」、電気学会 DEI/EWC 合同研究会、DEI-17-047、EWC-17-008 (2017)
- (5) 関口洋逸、高田達雄、三宅弘晃、田中康寛、「スチレン基の導入がポリエチレンの誘電・絶縁特性に与える影響」、電学論A, Vol.137, No.11, pp.614-619 (2017)

## 執 筆 者

関口 洋逸\* : エネルギー・電子材料研究所 主幹



高田 達雄 : 東京都大学 名誉教授 (工学博士)



三宅 弘晃 : 東京都大学 准教授 (工学博士)



田中 康寛 : 東京都大学 教授 (工学博士)



\*主執筆者