

$$\frac{Q(t_m)}{Q(0)} = 1 + \frac{t_m}{\tau}$$

架橋ポリエチレンの空間電荷・伝導挙動の Q(t) 法による理解と解析

Analysis and Elucidation of Space Charge and Electrical Conduction Behaviors of Cross-linked Polyethylene by Q(t) Method

関口 洋逸*
Yoitsu Sekiguchi

細水 康平
Kohei Hosomizu

山崎 孝則
Takanori Yamazaki

高田 達雄
Tatsuo Takada

田中 康寛
Yasuhiro Tanaka

高分子材料に電圧を印加した時に流れる微小電流は材料内で起こっている物理現象を反映しており、材料の誘電・絶縁現象を理解する上で非常に重要である。その解析手法として、我々は電流積分電荷法 (Q(t) 法) を用い、電流を積分して電荷量として計測する手法を検討している。ここでは、矩形波電圧印加直後の瞬時充電電荷量 (Q(0)) と時間 t_m 後の電荷量 (Q(t_m)) の比である電荷量比 ($R_c = Q(t_m)/Q(0)$) を新たなパラメータとして導入し、交流および直流ケーブル用の架橋ポリエチレン (AC-XLPE および DC-XLPE) を試料とし、数十時間の課電を行ってその空間電荷および伝導挙動について解析を行った結果を紹介する。

It is very important to understand the current that flows in a polymer material when a voltage is applied to it because it reflects the physical phenomena that occur in the material. To measure and analyze the phenomena, we have been studying the direct current integrated charge (Q(t)) method in which integrated currents are measured and analyzed as the amount of charge. Here, the ratio of the charge current immediately after the application of square wave voltage Q(0) and the charge t_m after the application of voltage is introduced as the charge ratio $R_c = Q(t_m)/Q(0)$. The physical meaning of R_c was discussed, and it is shown that R_c can be expressed by a simple equation between the relaxation time of the material and the measured time of the material in an ideal state of electrical conduction. These relations were used to analyze the conductive state of cross-linked polyethylene.

キーワード：誘電・絶縁材料、電流積分電荷法、緩和時間、電気伝導

1. 緒 言

近年世界的に開発が活発化している直流送電ケーブルには、直流電圧が印加された時に絶縁性が高く（即ち、電流が流れにくく）、電荷蓄積の少ない絶縁材料が求められる。このような特性を持つ絶縁材料の開発を促進するため、当社では電流積分電荷法 (Q(t) 法) を用いて材料のスクリーニングや特性改善メカニズムの検討を行っている。

以前、SEI テクニカルレビューに紹介した⁽¹⁾ように、Q(t) 法は簡単な操作で多くの誘電特性に関する情報を得ることができる優れた手法である。その特長は、電流を積分して電荷量として測定するところに起因する。測定回路の概念図を図 1 (a) に示す。

高分子材料に図 1 (b) に示すような矩形波電圧を印加すると、図 1 (c) に示すように最初に瞬時充電電流が流れ、続いて空間電荷の移動や蓄積に起因する吸収電流、最後には定常状態としての伝導電流が流れる。通常、これらの電流は、個々にその特徴に応じた計測手法によって計測されるが、図 1 (d) に示すように電流を積分して電荷量として測定すると、瞬時充電電荷量 Q(0) が印加電圧と試料の静電容量の積 ($Q(0) = C_s V_{dc}$) となり初期値を明確にできることから、その後の吸収電荷量や伝導電荷量の変化の過程を俯瞰的に見ることが可能となる。例えば、高圧法低密度ポリエチレン (LDPE) や交流送電用の電力ケーブルに絶縁材料

として用いられる架橋ポリエチレン (AC-XLPE) に、長時間にわたって高電界を印加し、漏れ電流の測定を実施すると、1 日を経過しても電流値は一定にならず、減少傾向が継続する様子が観測される⁽²⁾。また、温度や印加電界によって材料中に空間電荷が蓄積する場合は、その挙動が電流に大きく影響する。このような変化の過程を追跡できるということである。ここでは、Q(t) 法を用い、AC-XLPE および直流送電用電力ケーブルの架橋ポリエチレン (DC-XLPE) の計測とその空間電荷挙動を含む電気伝導現象の網羅的、俯瞰的な評価を試みた。

2. Q(t) 法の特長

評価手法として用いる Q(t) 法を一言で説明すると、試料と直列に接続した積分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。電流の現象を見ているが、電荷量として計測することにより通常の電流計測とは異なる現象の側面が見える。

矩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。

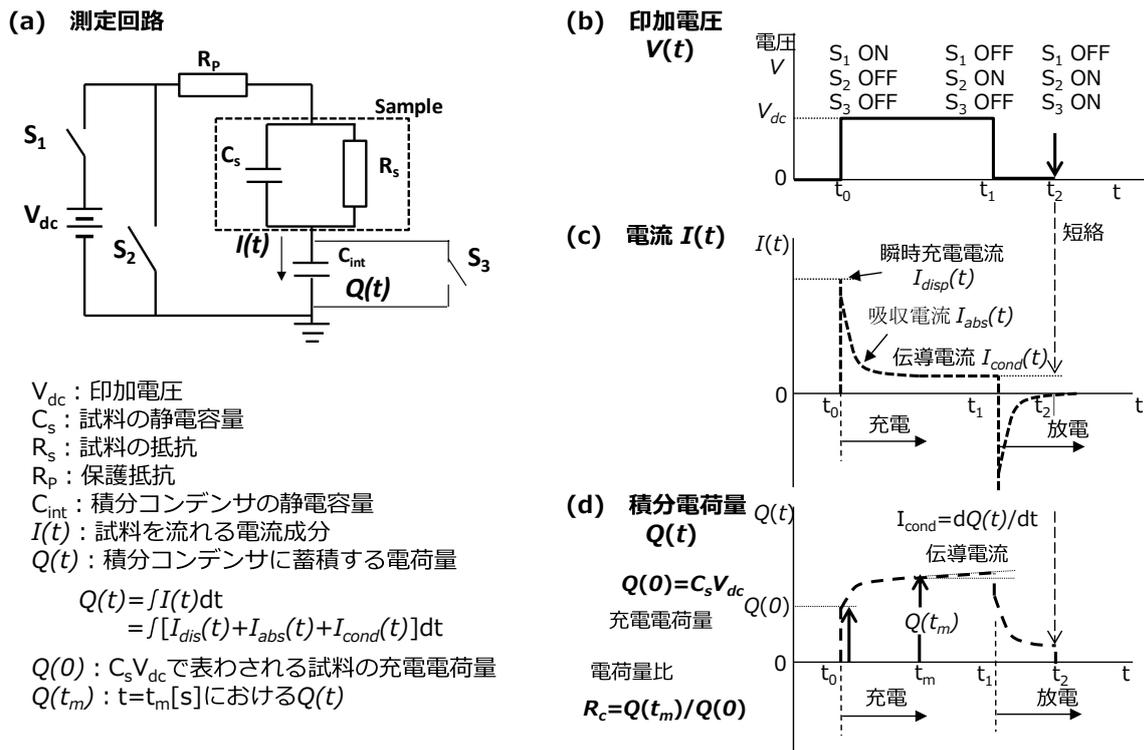


図1 Q(t)法の(a)測定回路と(b)矩形波電圧の波形、矩形波電圧印加時の(c)電流I(t)および(d)積分電荷量Q(t)のイメージ⁽¹⁾

$$Q(t) = \int I(t) dt = \int [I_{disp}(t) + I_{abs}(t) + I_{cond}(t)] dt \dots\dots\dots (1)$$

$$= Q_{disp}(t) + Q_{abs}(t) + Q_{cond}(t)$$

ここで、 $I_{disp}(t)$ は、矩形波電圧印加直後の瞬時充電電流、 $Q_{disp}(t)$ は瞬時充電電流による電荷 (= 電極電荷)、 $I_{abs}(t)$ は空間電荷の蓄積・移動に伴う吸収電流、 $Q_{abs}(t)$ は吸収電荷、 $I_{cond}(t)$ は伝導電流、 $Q_{cond}(t)$ は伝導電荷である。 $I_{disp}(t)$ の積分値は電極電荷として試料の静電容量 C_s と印加電圧 V_{dc} の積となる。 $\int I_{disp}(t) dt = C_s V_{dc} = Q(0)$ とすると、式 (1) は式 (2) のように書き換えられる。

$$Q(t) = Q(0) + \int [I_{abs}(t) + I_{cond}(t)] dt \dots\dots\dots (2)$$

Q(t)法では、矩形波電圧立ち上がり以降の電流成分をすべて積分すると、初期値としてQ(0)が明確に定義できる。これに対し、伝導電流の計測手法として使用される微小電流計では、通常試料と直列に接続した微小抵抗により電流を計測しており、Q(0)に対応するI(0)を測定するのは困難である。課電の初期値であるQ(0)を明確に求められることがQ(t)法では重要な意味を持つ。

Q(t)法により得られるデータの理解のため、我々は新しいパラメータとして「電荷量比 (R_c)」を導入した⁽³⁾。

R_c は、時間 t_m 経過後の $Q(t)$ である $Q(t_m)$ と、矩形波電圧印加直後の立ち上がりに対応する $Q(0)$ との比で表され、式 (3) のように定義する。

$$R_c \equiv \frac{Q(t_m)}{Q(0)} \dots\dots\dots (3)$$

電荷量比は、式 (2) の両辺を $Q(0)$ で除した式 (4) からわかるように、吸収電流、伝導電流がない理想的なコンデンサの場合には“1”となり、吸収電流、伝導電流成分の増加とともにこれらが“1”からの増加分として計測される。

$$\frac{Q(t)}{Q(0)} = 1 + \frac{Q_{abs}(t) + Q_{cond}(t)}{Q(0)} \dots\dots\dots (4)$$

このようなQ(t)法と電荷量比 R_c を用いると、絶縁材料の表1に示すような特性を見ることが可能である。表1に、微小電流測定、PEA法と比較する形でQ(t)法の特徴をまとめた。

3. AC-およびDC-XLPEのQ(t)

Q(t)法を用いて、AC-およびDC-XLPEの測定を実施した。試料としてプレス成型で加工した厚さが約0.2 mmのフィルムを使用し、短時間 (600 s) および長時間 (8 h) を1サイクルとして繰り返して課電) の評価を実施した。実験には、(株)エー・アンド・デイ製電流積分計 (AD-9832)、

表1 誘電・絶縁特性評価手法の比較⁽¹⁾

		微小電流計測	電流積分電荷法 (Q(t)法)	パルス静電応力法 (PEA法)
計測機器		微小電流計 (ピコアンメータ)	電流積分計 (Q(t)メータ)	PEA計測装置
適用範囲	空間電荷分布	×	×	◎
	電荷蓄積の有無	×	◎	○
	電気伝導率	◎	◎	×
	誘電率	×	◎	×
測定機器・技術の特徴		<ul style="list-style-type: none"> 測定は比較的容易 ノイズの除去が難しい 	<ul style="list-style-type: none"> 測定は比較的容易 電流成分がかかわる物理現象 (静電蓄積、伝導、空間電荷) を網羅的に把握可能 積分によりノイズがキャンセルされる。⇒ノイズに強い 	<ul style="list-style-type: none"> 電荷蓄積の空間的および時間的観測が可能 信号処理に高度なテクニックが必要 課電系と計測系とが絶縁されており、絶縁破壊の影響を受けにくい

松定プレジジョン(株)製直流電源 (HMBR-30R0.4, max 30 kV, 0.4 mA) を使用した。

3-1 短時間課電

同一試料に、10から100 kV/mmの電界を印加して600 s 課電、300 s 放電の測定を低電界側から行った⁽⁴⁾。なお、測定の前に、架橋剤の分解残渣を除去するために60℃, 24 hの真空乾燥を実施している。

図2に、80℃における充電時の計測結果を示す。横軸に時間、縦軸に電荷量比 R_c を取り、印加電界ごとの R_c の時間変化を描いている。

図2を見ると、AC-XLPEは、低電界印加時から R_c の立ち上がりが見られるのに対し、DC-XLPEでは高電界でもほとんど R_c が1であり、かつ変化が非常に小さいことがわかる。

3-2 長時間課電

前節では、短時間におけるQ(t)の電界依存性について見たが、一般にケーブルのような電力機器は数十年にわたって継続的に使用されることから、長時間課電時の挙動の評価が重要である。そこで、ここでは60℃において、60 kV/mmの電界を印加して8 hの課電ON、16 hの課電OFFを1サイクルとし、数回の課電サイクルの中でQ(t)挙動の変化を追跡した⁽⁵⁾。AC-XLPEとDC-XLPEの測定例(課電時のみ)を図3にまとめる。興味深いのは、AC-XLPEの場合、1サイクル目の課電と比較して、2サイクル目以降は R_c

の立ち上がりが長時間側にシフトし、かつ収束していく点である。DC-XLPEの場合は、8 hの連続課電を実施しても R_c の立ち上がりは小さく、課電サイクルの繰り返しによる影響も小さいと言える。

このようなQ(t)の挙動の違いを理解するため、“電荷量比 R_c ”の意味について詳細に見てみることにする。

4. 「電荷量比」の意味

電荷量比の意味については、文献⁽³⁾に詳述されているが、ここではその概要を記述する。

先述したように、電荷量比 R_c の意味するところは、式(2)の両辺をQ(0)で除すると理解しやすい。即ち、式(4)に示されるように、瞬時充電電流による電極電荷のみ(即ち、理想的なコンデンサ)である場合は $R_c = 1$ であるが、吸収電流や伝導電流の増加に伴い“1”からの増加分が計測される。

この R_c の意味を電磁気学的に考える。オームの法則($J = \kappa \cdot E_{dc}$)を起点とし、 $dQ(t)/dt = I(t)$ 、 $V_{dc} = E_{dc} \cdot d$ 、 $Q(0) = C_s \cdot V_{dc}$ 、 $C_s = \epsilon S/d$ (ただし、J:電流密度、 E_{dc} :印加電界、 V_{dc} :印加電圧、 κ :試料の電気伝導率、d:試料厚み、S:電極面積、 C_s :試料の静電容量、 ϵ :試料の誘電率)といった関係式を使って整理すると、式(5)が得ら

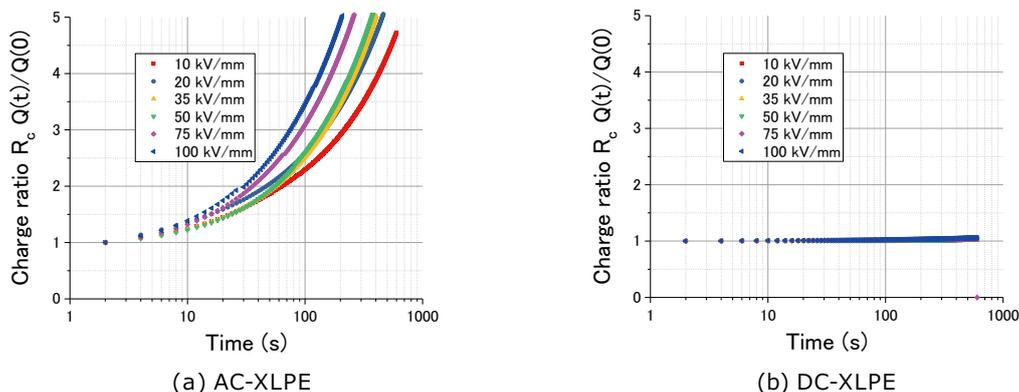


図2 80℃、10-100 kV/mmの電界下で測定したAC-およびDC-XLPEの電荷量比の600 sにわたる時間変化⁽⁴⁾

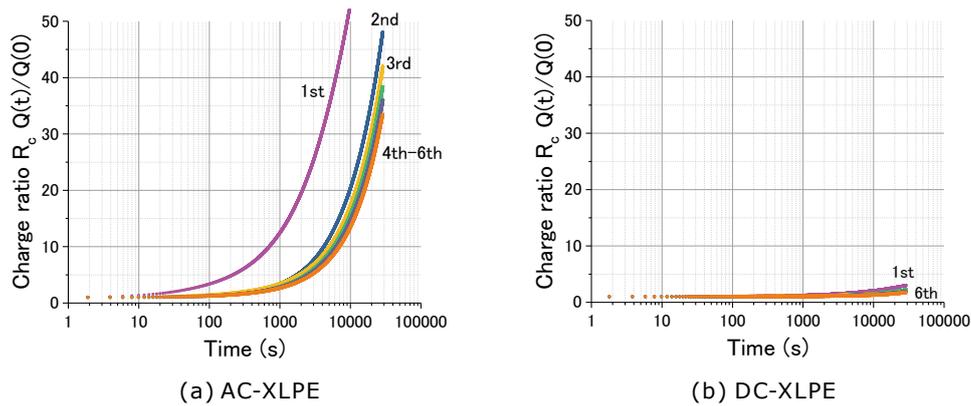


図3 60℃、60 kV/mmの電界下で測定したAC- および DC-XLPE の長時間にわたる電荷量比の時間変化⁽⁵⁾
(1回当たり8 hの課電を6回繰り返して実施)

れる。

$$\frac{dQ(t)}{dt} = \frac{\kappa}{\epsilon} \cdot Q(0) \dots\dots\dots (5)$$

dQ(t)/dtは、微小時間領域におけるQ(t)の変化量の意味であるが、Q(t)の時間tに対する変化が線形である場合はΔQ/Δtと置き換えられる。また、誘電緩和時間τ = ε/kである。Δtの範囲を0からt_m、時間t_mにおけるQ(t)をQ(t_m)と表し、関係を整理すると、式(6)が得られる。

$$R_c = \frac{Q(t_m)}{Q(0)} = 1 + \frac{t_m}{\tau} \dots\dots\dots (6)$$

結果として、R_cは、式(6)に示すように、t_mとτの簡単な関係式で表される。導出の過程から理解されるように、式(6)はQ(t)が線形である、即ち理想的な電気伝導状態において成立する関係であることに注意する必要がある。従って、実験値が式(6)と合致するという事は、その実験では一定の伝導電流のみが流れていることを示している。

5. 考 察

交流送電用および直流送電用電力ケーブルに用いられる架橋ポリエチレン (AC-XLPE および DC-XLPE) を用い、短時間課電 (600 s) と長時間課電 (8 h ON, 16 h OFF × 6 サイクル) を行った結果、以下に示すような特徴が見えてくる。

- (1) 80℃において印加電界を変化させて課電を行うと、AC-XLPEでは低電界から時間に対する電荷量比の立ち上がりが見られ、高電界になるほど立ち上がり早く、大きくなるのが観測される。一方、DC-XLPEでは、高電界でも600 sの範囲で電荷量比の増大は見られず、電界上昇に対しても変化が小さい。
- (2) 長時間課電時における伝導挙動の評価の一環として、60℃、60 kV/mmの条件で8 h ON, 16 h OFFを1サイクルとする長時間の課電を行うと、DC-XLPE

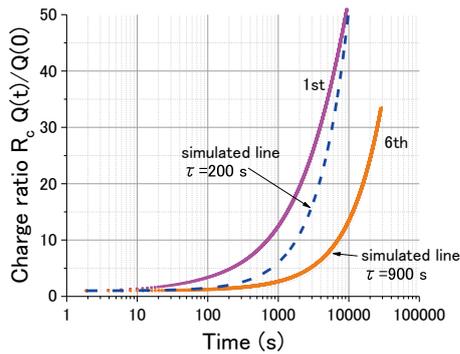
では、時間に対する電荷量比の増大は抑制され、課電サイクルの繰り返しによる差異も小さい。一方、AC-XLPEには時間に対して電荷量比の著しい増大が見られるが、課電サイクルを繰り返すに従い、電荷量比のカーブは長時間側にシフトし、かつ収束する傾向を示す。

AC-XLPEにおける伝導挙動の変化を理解するため、式(6)を用いてカーブフィッティングを行った。

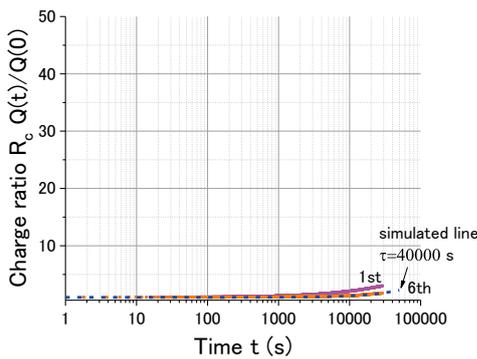
図3(a)におけるAC-XLPEの1回目および6回目のデータを抽出し、式(6)に適当なτを代入して理論式との整合を見たのが図4(a)である。1回目のカーブは、どのようにτを選んでも理論曲線と実験値とを整合させることができないのに対し、6回目のカーブは適当なτ(ここでは900 s)を選ぶと、理論曲線と実験値とが良く整合する結果となった。先述のように、式(6)は導出の過程から、理想的な伝導状態を表していると考えられるので、この結果は伝導電流以外の電流成分の影響を見ていると考えることができる。即ち、1回目のカーブで理論曲線と合致しないのは、伝導電流成分以外の吸収電流成分が多いため、6回目のカーブでは吸収電流成分がほぼなくなってほぼ伝導電流成分のみとなっていると解釈することができる。

DC-XLPEの場合(図4(b))は、課電の初期から定常状態に近い状態、即ち吸収電流がほとんどなく伝導電流のみとなっている点が、AC-XLPEとは異なる。

これらの特徴から、AC-およびDC-XLPEにおける空間電荷挙動、電気伝導挙動について考える。AC-XLPEの場合に見られる特徴は、①印加電界の影響を強く受けて電流が増加する、②一定電界を印加する場合、長時間課電サイクルを繰り返し行くと徐々に電流が低下し、伝導電流が主体となる状態に落ち着く。例えばGhorbani等による長時間の伝導電流計測⁽²⁾やTanaka等によるPEA法による計測結果^{(6)~(8)}と併せて考えると、課電の初期に見えていた空間電荷の蓄積・移動に伴う吸収電流が、長時間の課電あるいはその繰り返しによって減少し、伝導電流が主体となる定常状態に落ち着いてくると考えることができる。DC-XLPE



(a) AC-XLPE



(b) DC-XLPE

図4 AC- およびDC-XLPEの1回目および6回目の電荷量比の実験データと式(6)により求めた理論曲

の場合は、課電の初期から伝導電流のみの定常状態に近い状態となっていると考えられる。

6. 結 言

本稿において、電流積分電荷法(Q(t)法)を用いて電圧印加時に試料中を流れる微小電流を電荷量として測定することの意義について、新しく導入したパラメータである電荷量比とその解釈の方法を記述した。電荷量比が、試料の緩和時間と計測時間の簡単な関係式(式(6))で表されることを示し、それを架橋ポリエチレンに当てはめてデータの解析を行った。また、式(6)は、理想的な電気伝導状態を表していることから、式(6)に適切な緩和時間を与えて得られる理想曲線と実測値との比較を行うと、その試料における電気伝導状態が推定できることを示した。

このような手法を用いて架橋ポリエチレンの電気伝導特性を解析し、微小電流測定やPEA法を用いて過去に得られている知見との整合を確認するとともに、長時間課電あるいは長時間の繰り返し課電時における電気伝導状態の変化、すなわち課電の初期には影響の大きい吸収電流が時間の経過とともに減少し、伝導電流主体の定常状態に落ち着くことを確認した。また、AC-XLPEと比較すると、DC-XLPEでは電荷および電流の動き自体が小さい、即ち課電の初期

から定常状態に近い状態となっており、伝導電流が非常に小さいことを確認した。

今回使用した式(6)によるモデルについて、今後はQ(t)法とPEA法の同時測定による妥当性の検証を行い、解析精度を上げて行きたいと考えている。

参 考 文 献

- (1) 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絶縁材料の高圧誘電特性評価」、SEIテクニカルレビュー第193号、pp. 58-62 (2018)
- (2) H. Ghorbani, T. Christen, M. Carlen, E. Logakis, L. Herrmann, H. Hillborg, L. Petersson, and J. Viertel, "Long-term conductivity decrease of polyethylene and polypropylene insulation materials," IEEE Trans. DEI, Vol.24, No.3, pp. 1485-1493 (2017)
- (3) 高田達雄、関口洋逸、田中康寛、「Q(t)法における電極電荷・蓄積電荷・漏れ電荷の区別」、電学論A, Vol. 141, No. 4, pp. 245-251 (2021)
- (4) 関口洋逸、高田達雄、田中康寛、「電流積分電荷法による交流および直流用架橋ポリエチレンの評価」、平成29年電気学会A部門大会
- (5) Y. Sekiguchi, K. Hosomizu, T. Yamazaki, T. Takada and Y. Tanaka, "Conduction phenomena of AC- and DC-XLPE analyzed by Q(t) method," IEEJ Trans. FM., Vol. 141, No. 10, pp. 584-589 (2021)
- (6) 藤富寿之、春日博希、三宅弘晃、田中康寛、「高温直流高電界下におけるポリエチレンフィルム内の伝導電流特性の解析」、電気学会 誘電・絶縁材料研究会、DEI-15-079 (2015)
- (7) H. Kasuga, T. Fujitomi, H. Miyake and Y. Tanaka, "Simultaneous measurement of space charge distribution and external circuit current in XLPE under HVDC at high temperature," Proc. 2016 IEEE International Conference on Dielectrics (ICD), Vol.1, pp.227-230 (2016)
- (8) Y. Tanaka, "Space Charge Distribution Measurement using PEA Method-Encounter with unexpected behavior-," ICPADM2018 (2018)

執 筆 者

関口 洋逸* : エネルギー・電子材料研究所 主幹



細水 康平 : エネルギー・電子材料研究所
(博士 (工学))



山崎 孝則 : エネルギー・電子材料研究所 主幹
(博士 (工学))



高田 達雄 : 東京都市大学 名誉教授
(工学博士)



田中 康寛 : 東京都市大学 教授
(工学博士)



*主執筆者