

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24560330

研究課題名(和文)高温下における内部蓄積電荷分布の最適化と電気特性の解明

研究課題名(英文) Optimization for Internal Accumulated Charge at High Temperature and Clarification of Insulating Property

研究代表者

村上 義信 (Yoshinobu, Murakami)

豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10342495

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：高温下における音響特性と空間電荷同時測定装置を開発するとともに空間電荷分布の補正法の確立し、高温下において空間電荷が直流絶縁特性に与える影響を明らかにすることを当該研究の目的とした。

高温下において見かけ上音響インピーダンスを評価し、測定システムに音響特性および空間電荷評価において問題はないことなどを確認した。また、半導電電極と試料の実測系における音響インピーダンス評価し、それを用いて空間電荷分布波形の新たな補正処理を実施した。その結果従来の補正方法よりも開発した補正方法は電荷量のピーク値で約16%程度異なることなどがわかった。

研究成果の概要(英文)： The purpose of this study is to develop the space charge measurement system equipped with a measurement function for the acoustic properties and to clarify the insulating properties influenced by the space charge at high temperature.

The space charge distribution and the acoustic property could be uneventfully estimated using the developed space charge measurement system from the results like temperatures dependant acoustic impedances. The acoustic impedances of a film and semi-conducting electrode were also estimated in a real electrode system. Signal recovery of the charge density distribution considering the acoustic property was performed. The results reveal that the conventional method excessively corrects the attenuation with 16 % in this experimental condition.

研究分野：電気工学、高電圧工学、計測工学

キーワード：パルス静電応力法 空間電荷 高温測定 音響特性 電荷分布補正

### 1. 研究開始当初の背景

電気絶縁性および保守性の観点から固体高分子絶縁体が各種電力機器に多用されているが、コスト低減の要求から絶縁系に加わる設計ストレスは材料の本質的な破壊ストレスに近づいている。一方、太陽電池などのいわゆる再生可能エネルギーの利用増大、大容量かつ安定的な電力融通（直流連携）設備の更なる必要性および上記のような絶縁系状況などを勘案した場合、緊急に解決しなければならない課題の一つに直流絶縁があるが、直流絶縁において最も問題となるのが絶縁体中の電界を局所的に変歪させる内部蓄積電荷（空間電荷）の問題である。最も幅広く利用されている空間測定方法に圧力波伝搬を利用したパルス静電応力法があるが、空間電荷分布波形の減衰や分散を考慮した補正方法はいくつか存在するものの、音響的特性を介して測定しているにもかかわらず材料そのもの、または測定に不可欠な半導電電極の音響的性質を同時測定した例は全くない。一方、機器にもよるが実機の運転温度は60以上の高温となることが容易に予想されるため、高温下における空間電荷分布の補正および把握が必要である。対象としている高分子絶縁体は高温下ほど音響的特性が劇的に変化し、同時に高温下ほど空間電荷が蓄積され易くなることが予想されるため両影響を分離することは重要であり、出力された空間電荷分布の補正は絶縁特性の把握において必要不可欠である。

### 2. 研究の目的

本研究では高温下における音響特性と空間電荷同時測定装置を開発し、高温下における空間電荷分布の補正法の確立を目指すことが一つの目的である。また、電気伝導などの他の物理量も測定し、高温下において空間電荷が直流絶縁特性に与える影響を明らかにする。高温下の空間電荷測定法および絶縁物性の基本的指針を明らかにすることが本研究の目的である。

### 3. 研究の方法

高温下における内部蓄積電荷分布の最適化と電気特性の解明に向けて、初年度は高温下における音響特性と空間電荷同時測定装置の設計、発注および組立を実施し、装置の完成を目指した。設計終了後から次年度前半にかけて同時に解析プログラムの開発を実施した。次年度以降は初年度において達成できなかった項目を実施するとともに、耐熱性の高いポリイミド等の材料を用いて空間電荷分布を測定し、分布の最適化を目指した関連研究を実施した。

### 4. 研究成果

(1) 試料と下部電極の界面状態が空間電荷分布に与える影響

パルス静電応力(PEA)法は電荷に起因した圧力波を検出することにより、電荷の位置、大きさおよび極性を知ることができる測定装置である。ここでは試料と下部電極の界面状態の差異が電荷分布に与える影響を調査した。

図1に音響特性測定機能付PEA装置を示す。この装置においては試料に直流バイアス電圧とパルスジェネレーター1(P.G.1)から数ナノ秒のパルス幅をもつ高電圧パルスを印加することにより空間電荷分布を測定することができる。また、このシステムは、P.G.2から数ナノ秒のパルス幅をもつ数ボルトの電圧パルスを圧電素子に印加することにより空間電荷測定と同一の状態において音響特性を測定できるシステムでもある。

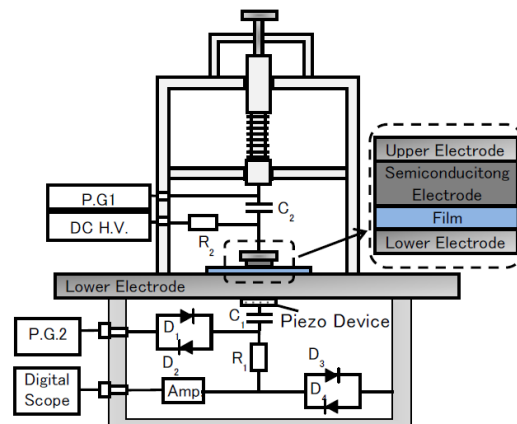


図1 音響特性評価機能付PEA装置

図2に各圧力下における電圧印加600秒後の空間電荷分布図を示す。同図の横軸の0は圧力約1706.7 kN/m<sup>2</sup>印加の場合の陰極ピーク位置である。低圧力の場合に下部電極ピーク位置が陽極側へ移動した。試料/下部電極界面にある程度の厚さのシリコン油層が存在し、界面分極により電荷が移動したためと考えられた。また、低圧力の場合は両極ピーク値が減少した。試料と下部電極の密着度（音響インピーダンス値）が低くなり、試料/下部電極界面において発生する音波の大きさが減少し、その界面を通過する音波（試料

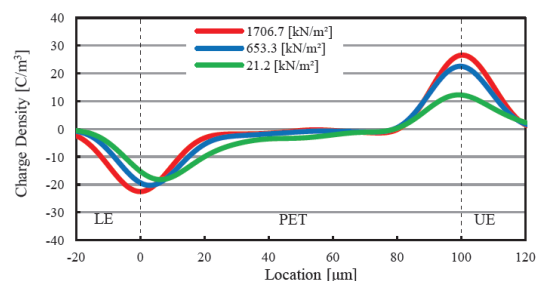


図2 各機械的圧力下における空間電荷分布

/上部電極界面で発生した音波)の透過割合が減少したためと考えられた。

(2)高温下におけるポリイミド(PI)の空間電荷と音響特性の同時測定システムの構築

高温条件下では、半導電電極の硬さ等が変化し、空間電荷測定システムにおける電極系の音響特性が室温の場合と変化する可能性がある。ここでは音響特性を測定できる高温用空間電荷計測システムを構築し、下部電極側から見た試料の見かけ上の音響インピーダンスの温度特性を評価した。

試料としては厚さ約 130  $\mu\text{m}$  の PI を用いた。温度約 298-473 K においてパルスジェネレータ 2 から波高値約 8 V、パルス幅約 5 ns のパルス電圧を圧電素子に印加し、下部電極と PI の間の界面からの反射信号を同一の圧電素子を用いて観測した。また、473 K において、直流 8 kV 印加下の空間電荷分布をパルス静電応力法にて測定した。

図 3 に PI / 下部電極界面からの反射信号より算出した音響インピーダンスの温度変化を示す。プロットは測定値、実線は音速と、室温における文献値および熱膨張率から計算した密度により評価した音響インピーダンスである。音速は空間電荷信号の両極ピークの時間差、試料厚さおよび線膨張率から計算した。音響インピーダンスは、温度上昇に伴いほぼ一定の割合で減少し、この特性は一般的な固体の音響インピーダンスの温度特性に一致する。図 4 に 473 K における電圧印加 1 秒後と 600 秒後の PI の空間電荷分布を示す。電圧印加直後に両極近傍にヘテロ電荷が形成された。この結果は、以前に同一条件で測定された空間電荷分布と一致したことから、今回構築した測定システムでは、高温下

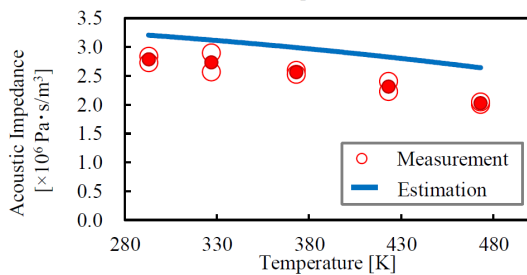


図 3 PI の音響インピーダンスの温度変化

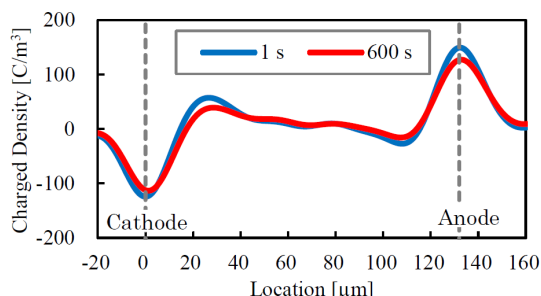


図 4 473 K における PI の空間電荷分布

において音響特性測定回路が空間電荷測定に与える影響は少ないと考えられた。

(3)空間電荷分布の音響特性を考慮した補正

一般に空間電荷分布の補正方法においては半導電電極と試料の音響インピーダンスは一致しているものと仮定しており、更に正確な補正を実施するためには実際の測定系における電極と試料の音響特性を考慮する必要がある。ここでは、試料側からみた半導電電極の見かけ上の音響インピーダンスを用いて、空間電荷分布の補正処理を行った。

厚さ約 200  $\mu\text{m}$  のエチレン酢酸ビニル共重合体(EVA)(酢酸ビニル含有量 10 wt%)を試料とした。下部電極/試料界面にシリコン油を約 20 mg 塗布し、EVA、半導電電極および上部電極の順に設置した。半導電電極側に 8 kV の直流電圧を 20 分間印加した後、電極系を短絡し、短絡 30 秒後の空間電荷分布を測定した。

電素子で検出される上部電極/試料界面から発生した圧力波の信号強度  $P_{UE}(f, d)$  は下記式で表される。

$$P_{UE}(f, d) = P_{LE}(f, 0) \frac{2Z_{EVA}}{Z_{EVA} + Z_{semi}} e^{-\alpha(f)d} e^{-j\beta(f)d}$$

ここで、 $P_{LE}(f, 0)$  は圧電素子が検出する下部電極/試料界面から発生した圧力波の信号強度、 $Z_{EVA}$  は下部電極側からみた試料の音響インピーダンス、 $Z_{semi}$  は試料側からみた半導電電極の音響インピーダンス、 $\alpha(f)$  は減衰関数、 $\beta(f)$  は分散関数、 $d$  は試料厚さを示す。この式に、本実験の条件である  $d = 200 \mu\text{m}$ 、音響特性測定機能付き PEA 装置により評価した  $Z_{EVA} = 1.38 \text{ MPa} \cdot \text{s}/\text{m}^2$ 、 $Z_{semi} = 2.00 \text{ MPa} \cdot \text{s}/\text{m}^2$

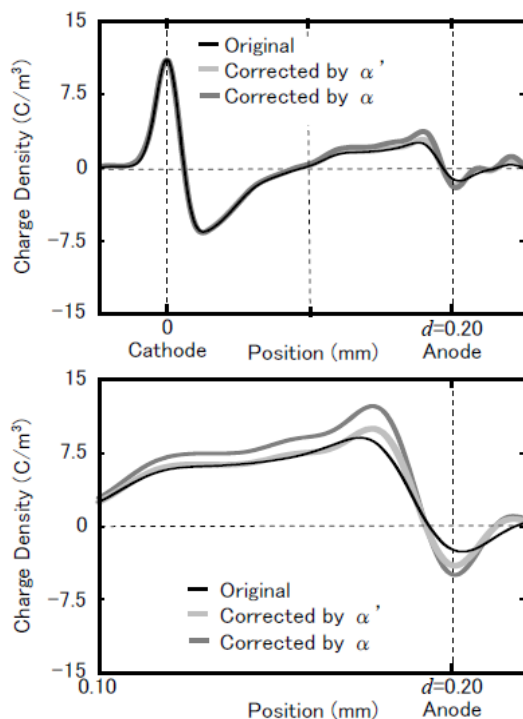


図 5 音響特性を考慮した分布補正

を代入し、電圧印加 1 秒後の EVA の空間電荷分布における  $P_{UE}(f, d)$  および  $P_{LE}(f, 0)$  を用いて (f) を導出した。また、比較のため音響特性を考慮していない減衰補正も行った。

図 5 に電圧印加 600 秒後の EVA の各空間電荷分布を示す。陰極付近の分布はほとんど変化しなかったが、陽極に近くなるにつれて音響特性を考慮し補正した分布の電荷密度は音響特性を考慮せずに補正した分布のそれよりも小さくなった。音響特性を考慮したことにより減衰関数の減衰割合がより正確になったと考えられた。

#### (4) 半導電電極を用いない空間電荷測定法の提案

PEA 法においては音響整合をとるために上部電極と試料との間に半導電電極を挿入する必要があるが、条件によっては半導電電極が絶縁体の空間電荷特性に影響を与えることが報告されている。ここでは半導電電極を用いない空間電荷測定法を開発するため、同じ材料なら必ず音響的整合が取れることを利用した、新しい上部電極系を開発した。

厚さ約 100  $\mu\text{m}$  で酢酸ビニル含有量 10 wt% のエチレン酢酸ビニル共重合体(EVA)の両面に直径 10 mm の金蒸着を施したものを EVA 試料とした。図 6 に電極系を示す。片面に直径 10 mm の金蒸着を施した後、EVA 試料と接する面以外をアルミ箔で覆って電気的接触を保証し、その上に半導電電極を設置した(EVA 電極)。また、比較のため半導電電極のみを用いた通常の電極(半導電電極)系と筆者らが以前に開発した音響整合をとるために金属にスリットを入れた電極(金属電極)系についても用いて測定した。30  $^{\circ}\text{C}$  にて上部電極に 4 kV の直流電圧を印加し、10 分後の電圧印加中における空間電荷分布を測定した。

図 7 に各電極系における電圧印加 10 分後の空間電荷分布を示す。半導電電極系においては正電荷の形成が優勢となったが、金属電極系および EVA 電極系においては半導電電極系の場合に比べ、その正電荷が減少した。半導電電極系では、半導電電極中の低分子量不純物等が絶縁体表面に移行し、界面状態を変化させて空間電荷注入をアシストした、またはそれ自身が空間電荷となったため、半導電電極と同じ極性の電荷が蓄積したと考えられる。それに対して金属電極系および EVA 電極系では半導電電極を用いないことにより半導電電極の影響が除去されたと考えられる。以上より、開発した EVA 電極系は半導電電極の影響を排除することができることがわかった。金属電極系においても同様な効果はもたらされるが、金属電極系においては機械的圧力の不均一性の問題があるため、試

料と同一材料を半導電電極の代わりに用いる本方法は有益であると考えられる。

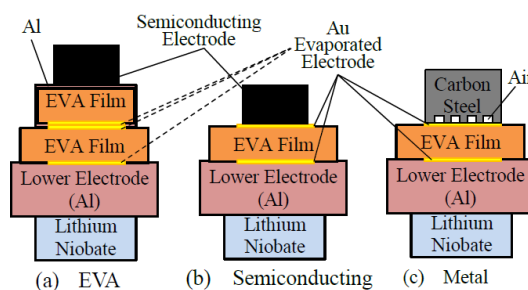


図 6 電極系

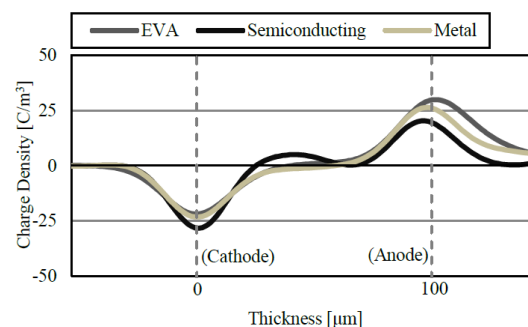


図 7 各電極系における空間電荷分布

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 0 件)

[学会発表](計 18 件)

Yoshinobu Murakami, Takuma Sugiyama, Tomohiro Kawashima, Masayuki Nagao and Masumi Fukuma: "Signal Recovery of Space Charge Distribution Using Acoustic Property in PEA Method", Proceedings of 11th International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials, No.SC2-1(2015)

杉山拓馬、村上義信、加藤広衣、川島朋裕、福間眞澄、小竹慎也、長尾雅行:「空間電荷分布の音響特性を考慮した補正」, 平成 27 年電気学会全国大会 講演論文集 [2], No.2-036(2015)

杉山拓馬、村上義信、川島朋裕、福間眞澄、小竹慎也、長尾雅行:「半導電電極が空間電荷分布に与える影響」, 電気学会研究会資料 誘電・絶縁材料研究会 DEI-14-078 ~ 086, No.DEI-14-079(2014)

杉山拓馬、村上義信、川島朋裕、福間眞澄、小竹慎也、長尾雅行:「半導電電極が

高温下におけるポリイミドの空間電荷分布に与える影響」,平成 26 年度 電気関係学会東海支部連合大会 講演論文集 CD-ROM , No.E1-5(2014)

T. Sugiyama, M. UQBAH, A. Ishikawa, T. Kawashima, Y. Murakami, M. Fukuma and M. Nagao: " Development of a Space Charge Measurement Method without a Semiconducting Electrode", Proceedings of 2014 International Symposium on Electrical Insulating Materials USB Memory, No.VB10, pp.397-400(2014)

Yoshinobu Murakami, Takuma Sugiyama, Tomohiro Kawashim, Masumi Fukuma and Masayuki Nagao: " Space Charge Measurement System Equipped with a Function to Measure Acoustic Properties", Proceedings of 2014 International Symposium on Electrical Insulating Materials USB Memory, No.DS1, p.156(2014)

杉山拓馬、村上義信、川島朋裕、福岡眞澄、西森才将、小竹慎也、長尾雅行:「高温下におけるポリイミドの空間電荷と音響特性の同時測定」,平成 26 年電気学会全国大会 講演論文集 [2] , No.2-015 , p.18(2014)

杉山拓馬、村上義信、川島朋裕、西森才将、小竹慎也、福岡眞澄、長尾雅行:「試料と下部電極の界面状態が空間電荷計測に及ぼす影響」,電気学会研究会資料 誘電・絶縁材料研究会 DEI-13-079 ~ 089 , No.DEI-13-088 , pp.55-60(2013)

Y. Murakami, T. Sugiyama, R. Funo, M. Fukuma and M. Nagao: " Influence of 1 Interfacial Condition between Film and Lower Electrode on Space Charge Measurement", 2013 Annual Report. Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena USB-Memory, No.8A-3, pp.1602-1605(2013)

杉山拓馬、村上義信、川島朋裕、福岡眞澄、西森才将、長尾雅行:「試料と下部電極の界面状態が空間電荷計測に及ぼす影響」,平成 25 年度 電気関係学会東海支部連合大会 講演論文集 CD-ROM , No.A4-4(2013)

布野竜二、石川晃、村上義信、栗本宗明、福岡眞澄、長尾雅行:「空間電荷分布測定系における半導電電極の音響インピーダンスの評価手法」,平成 25 年電気学会全国大会 講演論文集 [2] , No.2-011 , p.15(2013)

尾関俊介、林祐士、布野竜二、村上義信、栗本宗明、福岡眞澄、西森才将、長尾雅行:「半導電電極が高温下におけるポリイミド中の空間電荷形成に与える影響」,平成 25 年電気学会全国大会 講演論文集 [2] , No.2-009 , p.13(2013)

布野竜二、村上義信、栗本宗明、福岡眞澄、長尾雅行:「試料/下部電極界面の接触状態が空間電荷計測に与える影響」,平成 24 年度 電気関係学会東海支部連合大会 講演論文集 CD-ROM , No.G3-5(2012)

尾関俊介、布野竜二、村上義信、栗本宗明、福岡眞澄、西森才将、長尾雅行:「シリコンオイルが高温下における空間電荷分布に及ぼす影響」,平成 24 年度 電気関係学会東海支部連合大会 講演論文集 CD-ROM , No.G3-4(2012)

長尾雅行、栗本宗明、藤井雅之、村上義信、福岡眞澄:「機能性高分子材料中の空間電荷測定と特殊環境下における空間電荷測定装置開発」,平成 24 年電気学会全国大会 講演論文集 [2] , No.2-s3-4 , pp.S3(13)-S3(16) (2012)

布野竜二、村上義信、栗本宗明、福岡眞澄、長尾雅行:「PEA 法の試料/下部電極界面における接着物質が試料の音響インピーダンス計測に与える影響」,平成 24 年電気学会全国大会 講演論文集 [2] , No.2-031 , p.35(2012)

尾関俊介、布野竜二、村上義信、栗本宗明、福岡眞澄、西森才将、長尾雅行:「高温下におけるポリイミドの空間電荷測定」,平成 24 年電気学会全国大会 講演論文集 [2] , No.2-027 , p.31(2012)

布野竜二、村上義信、栗本宗明、福岡眞澄、長尾雅行:「超音波顕微鏡技術を用いた各材料の音響インピーダンス測定」,平成 23 年度 電気関係学会東海支部連合大会 講演論文集 CD-ROM , No.M2-2(2011)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

〔その他〕

<http://www.dei.ee.tut.ac.jp/index.html>

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

村上 義信 (MURAKAMI, Yoshinobu)  
豊橋技術科学大学・大学院工学研究科  
准教授  
研究者番号：10342495

### (2)研究分担者

長尾 雅行 (NAGAO, Masayuki)  
豊橋技術科学大学・大学院工学研究科  
教授  
研究者番号：30115612

### (3)連携研究者

福間 眞澄 (FUKUMA, Masumi)  
松江工業高等専門学校・大学院工学研究科  
教授  
研究者番号：70228930