



Title	固体絶縁体のナノ秒領域での絶縁破壊現象に関する研究
Author(s)	木谷, 勇
Citation	大阪大学, 1980, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/869
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

固体絶縁体のナノ秒領域での 絶縁破壊現象に関する研究

木 谷 勇

内 容 梗 概

本論文は、著者が愛媛大学工学部に在職中および文部省内地研究員として大阪大学工学部に留学中において行なった、「固体絶縁体のナノ秒領域での絶縁破壊現象に関する研究」の研究成果をまとめたもので、7章より構成されている。以下各章ごとに内容の概要を述べる。

第 1 章

固体絶縁体の破壊機構を解明することの重要性を述べ、基礎的な破壊の研究ならびに実用状態における破壊機構の研究の現状を述べることによって、本論文の目的と意義を明らかにした。

第 2 章

現在に至るまでになされ一般的に認められた固体絶縁体の破壊現象に関する多くの理論を述べるとともに、こうした理論が、実用状態においてそのまま適用し得ない複雑な要因について述べた。

第 3 章

高密度ポリエチレンを中心とした高分子フィルムに対し、立ち上り 1 ns の高電圧パルスを印加し、その破壊遅れ時間を測定した。広範囲な温度領域にわたる測定結果と電極効果の存在などから、 170°K 以下での高密度ポリエチレン、室温でのポリエチレンテレフタレートの破壊機構は、主に電極から注入された電子を初期電子とする電子なだれ破壊であり、前者では 215°K 以上、後

者では 373°K の温度では、主に試料内部から放出された電子を初期電子とするいくつかの電子なだれの協力による破壊であるとの推定を行なった。形成遅れ時間はいずれの場合も 1 ns 近い値を示し、極めて短いことが明らかとなった。

第 4 章

針対平板電極構成のもとで、 KCl と NaCl の単結晶に対しナノ秒パルスを印加した場合の結果について述べた。顕著な極性効果が存在し、正針の場合は、電圧印加と同時に結晶軸に沿って明瞭な発光を伴った放電路の進展が観測される事実から、気体放電における正ストリーマ破壊と類似の機構によりその破壊値が著しく低下することを述べた。また、 $\text{KCl}(100)$ の破壊前駆光を高速度の光電子増倍管により測定した結果を示し、破壊現象との関連について示した。

第 5 章

5 種類の高分子材料に対し、第 4 章と同様、針対平板電極構成のもとでナノ秒パルスを印加し得られた結果について示した。いずれの材料も極性効果があり、正針の方が負針の場合より破壊しやすいが、その効果も電極間隔の減少とともに減少あるいは消滅する。ただ、ポリメチルメタクリレートのみ電極間隔の大きな領域でも極性差が少ない材料であることが示された。正針、負針の両極性において、ポリスチレンは抜きんでて破壊し難い材料であることが明らかとなった。正針の場合、いずれの材料もその進展の難易はあるにしろ、正ストリーマの進展による破壊であり、負針の場合は、電子なだれ破壊もしくは負ストリーマ破壊であるとの推定を行った。

第 6 章

シリコン油中に生じた正ストリーマが KC1 (100) に進展する場合と, KC1 (100) 中に生じた正ストリーマがシリコン油層中に進展する場合の実験結果を示した。前者の実験においては, 正ストリーマは界面の影響を受けず進展するが, 後者の実験では, 界面の影響を非常に受け界面以後のシリコン油中の正ストリーマの進展が極めて困難になることが示された。この原因は正ストリーマ先端の電界強度が界面において緩和されることによるとの推論を示した。

第 7 章

本章では「固体絶縁体のナノ秒領域での絶縁破壊現象に関する研究で得られた第 3 章から第 6 章までの結果を総括し, 本論文の結論を述べる。

目 次

第 1 章	緒 論	1
第 2 章	固体絶縁体の絶縁破壊現象に関する一般的考察	4
2 . 1	固体絶縁体の基礎的破壊機構	4
	(I) 電子の衝突電離に基づく理論	5
	i) 単一電子近似理論	5
	ii) 単一電子なだれ理論	6
	iii) 電界放出破壊	9
	(II) 熱破壊理論	9
	i) 純熱破壊理論	9
	ii) 集合電子近似理論	11
2 . 2	実用状態における固体絶縁体の破壊	14
2 . 3	文 献	15
第 3 章	高分子フィルムの破壊遅れ時間とその温度特性	17
3 . 1	緒 言	17
3 . 2	実験装置と実験方法	18
3 . 3	実験結果と検討	22
	〔 3 . 3 . 1 〕 破壊遅れ時間と温度特性	22
	〔 3 . 3 . 2 〕 電極効果	25
	〔 3 . 3 . 3 〕 形成遅れ時間と移動度	29
3 . 4	結 論	32
3 . 5	文 献	33

第4章	不平等電界中（針対平板）におけるアルカリハライド結晶の短時間破壊と破壊前駆光	35
4.1	緒言	35
4.2	実験方法と試料	36
4.3	実験結果と検討	37
[4.3.1]	厚さ効果と極性効果	37
[4.3.2]	正ストリーマの進展	43
[4.3.3]	正ストリーマの進展方向と破壊	48
[4.3.4]	光電子増倍管による破壊前駆光の測定	50
4.4	結論	59
4.5	文献	61
第5章	不平等電界中（針対平板）における高分子絶縁物の短時間破壊	62
5.1	緒言	62
5.2	試料の実験方法	63
5.3	実験結果と検討	64
[5.3.1]	50%破壊電圧	64
[5.3.2]	形成遅れ時間	71
[5.3.3]	破壊機構	73
5.4	結論	77
5.5	文献	78
第6章	複合誘電体（液体と固体）の正ストリーマ破壊	80
6.1	緒言	80
6.2	実験方法と試料	81
6.3	実験結果と検討	82

〔 6 . 3 . 1 〕	破壊遅れ時間の特性	8 2
〔 6 . 3 . 2 〕	正ストリーマの平均進展速度	8 4
〔 6 . 3 . 3 〕	6 3 %破壊電圧からの検討	8 5
〔 6 . 3 . 4 〕	正ストリーマの進展機構と界面の効果	8 9
6 . 4	結 論	9 3
6 . 5	文 献	9 4
第 7 章	結 論	9 5

第 1 章 緒 論

電気絶縁材料の持つ本来の役割は、電気の流れるべき電気回路以外に電流を流れないようにしているにすぎず、能動的機能を持つ半導体素子に比較して、地味な存在といえる。しかし、絶縁機能の低下は電力系統や電気器機全体を停止させるばかりでなく、重大な事故につながる点を思えば、その信頼性の確立は極めて重要である。なかでも固体絶縁体は、気体、液体絶縁体に比較して一般にその破壊特性が良く、機械的支持能力を有する点等から、絶縁系統を究極的に支配していることが多く、その破壊機構の解明は重要な問題である。

固体絶縁体の基礎的な破壊過程については、イオン結晶を中心とした結晶体に対し、近代物性論的解釈が行なわれ、その理論的研究と実験的確認により、大きな成果を収めた。しかし、高分子のような非晶物質については、その破壊理論も少く、未知な点が多く残されている。

固体絶縁体が実用状態で使用される場合、電圧が長時間印加されることにより、様々な 2 次的因子が加わり、実験室内での基礎的研究で得られる破壊値に比べ、その破壊値が著しく低下することが多い。例えば、高電圧ケーブル等においては、用いられるポリエチレンの本質的破壊強度（約 6MV/cm ）に比較して 2 桁近く低い電界強度で使用されている。これは材料の劣化、部分放電によるトリ－等の局部破壊の発生と進展等、多くの因子が重畳され、予想外に低い印加電圧においても全路破壊が生じる恐れがあるため取られる処置である。高い信頼性を得るためには現状ではやむ得ぬ処置ではあるが、現代の厳しい絶縁設計を求める工学的要請に応じているとはいえない。樹枝状の局部破壊即ち、トリ－の発生と進展の問題は、実用上重要であるので、近年、特に活発に研究が行なわれている。その場合、針電極を用いてあらかじめ集中電界を与えるこ

ことが多いが、その針先端近傍の静電的に計算される電界が材料の本質的破壊強度をはるかに越える状態でも、その領域の材料になんらの異常も見出し得ぬことがよくある。これは電圧上昇過程において、電荷担体の移動による空間電荷のため電界緩和が行なわれ、実効の電界強度が減少しているためと考えられる。空間電荷の形成がトリ－の発生と進展に大きく影響していることは、さらに、前課電の効果や極性効果等から確められている。空間電荷の蓄積はトリ－のような局部破壊ばかりでなく、平等電界における破壊においても大きく影響することも、同様に、前課電の効果、極性反転の効果から明らかにされている。

今日における絶縁破壊の研究は、基礎的あるいはより実用的研究を問わず、空間電荷が破壊に与える影響に着目したものが多い。また誘電体内における空間電荷の挙動については、破壊過程にとどまらず、様々な角度から検討が加えられている。熱刺激電流の測定、種々の手法による電荷担体の移動度の測定などの多くの研究が行われている。このように空間電荷の問題は非常に重要であるが、破壊過程に与えるその蓄積効果を知るためには、逆に、できるだけその効果が無視し得るような状況を作ること方法である。例えば空間電荷の蓄積が少い極めて短い時間領域にて破壊実験を行うことである。また、針電極を用いた実験では、そのパルスの立ち上り時間が非常に速ければ、電圧を印加した瞬間においては針先端近傍では静電的に計算される極めて高い電界にさらされる一つの物理的状況を作り得る。

本論文は、このような観点に立って、立ち上り時間約 1 ns のパルス発生器を作成し、通常 100 ns の時間領域において、主に固体絶縁体を中心に種々の条件において破壊の実験を行い、得られた結果をまとめて報告するものである。実験は個々の試料に対しその破壊遅れ時間の分布、その最小値等の基礎的デー

タを得ることができる。このことにより、破壊の厚さ依存性、温度依存性等からでは得られない時間の項を与えることができ、物理現象の時間的過程を知る重要な手がかりとなり得る。

第 2 章 固体絶縁体の絶縁破壊現象に関する一般的考察

2.1 固体絶縁体の基礎的破壊機構

固体絶縁物の破壊過程に対する理論は、固体内の微少電流によるジュール熱の発生とその放散の熱平衡を考慮したWagnerの純熱破壊理論に始まる⁽¹⁾。この理論は温度上昇とともに破壊値が低下するいわゆる高温領域での破壊特性を説明することはできたが、広範囲な温度領域にわたる実験で見い出された低温領域の破壊特性を説明できなかった。また電流はイオン性のものと考えられていたが、その後、Rogowskiが陰極線オシログラフを用い、マイカの破壊時間は 10^{-7} s以下で非常に短いことを見い出し⁽²⁾、電子過程による破壊が注目をあびた。Hippel⁽³⁾⁽⁴⁾らはアルカリハライド結晶に対し、理論的実験的研究により、電界により加速された高速電子の衝突電離作用による電流増倍が破壊を誘発しているとの理論を示した。高速電子と格子系との相互作用の問題は、理論物理学の対象として注目を受け、Hippel⁽⁵⁾、Fröhlich⁽⁶⁾、Franz⁽⁷⁾らが量子力学的理論を示した。これらの理論により計算された破壊電界の値は、それらに含まれる不確定な基礎量や実験に含まれる制御しがたい2次的因子のため、実験値との定量的一致はみられなかった。しかし、定性的には低温領域の破壊特性の結果を説明し、破壊の基礎過程の理解を深めた。Seitz⁽⁸⁾は固体の絶縁破壊には電子密度がある臨界値以上に増大する必要があるとして電子なだれ理論を提示した。この理論は気体放電理論に類似したものであるが、破壊電界の試料厚さ依存性や電極材料の効果、あるいは破壊時間の統計的問題についても説明し得るようになった。

結晶体に対しては、この様に多くの理論が生れ成果を収めたが、実用的に特に重要な材料となってきた高分子材料のような非晶体の破壊理論は少い。これ

らに対しては Fröhlich の非常に多くの格子欠陥を持つ結晶体についての理論⁽⁹⁾の適用は考えられるが、不明な点が多い。

以上述べてきたような破壊の理論については、すでにいくつかの解説書⁽¹⁰⁾があるが、ここでは、主に電子の衝突電離に基づく破壊と熱破壊に大別して、以下に述べる。

I) 電子の衝突電離に基づく理論

i) 一電子近似理論

理論の大意は伝導電子が電界から得るエネルギー A とこの電子が格子振動との相互作用により失うエネルギー B のバランスを考えることにある。 A は電界 F ，格子温度 T_0 ，電子エネルギー E に依存し、次式で与えられる。

$$A(F, T_0, E) = \mu e F^2$$

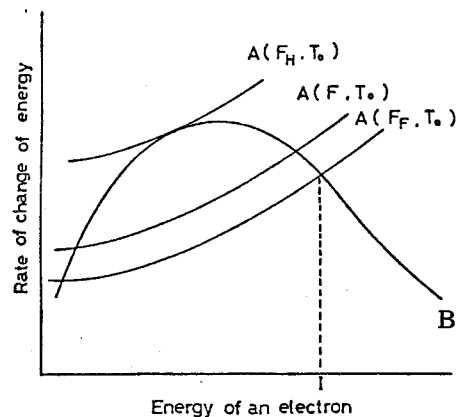
$$(\mu: \text{電子移動度}, e: \text{電子の電荷量}) \quad (2 \cdot 1)$$

一方、 B は格子温度、電子エネルギーに依存し、次式となる。

$$B(T_0, E) = h\nu_0 \cdot 1/\tau_0 \quad (2 \cdot 2)$$

$$(h: \text{プランク定数}, \nu_0: \text{格子振動数}, \tau: \text{電子衝突時間})$$

(2・1) 図に結晶中を格子振動に散乱されながら移動する電子に対して、その運動エネルギーと A, B の関係をモデル的に示す。 F_H の電界においては、いかなるエネルギーの電子も $A \geq B$ となり走行中にエネルギーを増し、電離エネルギーに達し、衝突電離を起すようになる。



このような電界を破壊の臨界条件として (2・1) 図 破壊とエネルギーバランス

Hippel はその理論を展開した⁽⁵⁾。この理論は“低エネルギー基準として知られている。これに対し、Fröhlich は電界が F_F 以上であれば固体内に確率的に存在するエネルギーの高いイオン化エネルギー付近の電子が、さらにエネルギーを獲得し衝突電離を起し得ることを指摘した⁽⁶⁾。彼の理論は“高エネルギー基準”による理論といわれる。

以上は定性的に述べているにすぎないが、その量子力学的計算に基づく破壊電界の値は、理論的に問題点を残しながらも、実測とかなり良い一致を示した。また、破壊の方向性の問題⁽¹¹⁾、低温領域での破壊温度特性、不純物原子の導入による破壊の上昇⁽¹²⁾ などについて説明を与えることに成功した。

ii) 単一電子なだれ理論

一電子近似理論においては破壊の条件を電離が開始する電界としているが、Seitz は破壊が誘発されるためには電離増倍すなわち電子密度がある臨界の値以上に達する必要があると考え、その理論を展開している⁽⁸⁾。その後 Stratton らによって多少修正が加えられたが⁽¹³⁾、その理論は単一電子なだれ理論として知られ、重要な理論である。

電子が衝突を起さないで、電界によりその平均エネルギー E_{av} から電離エネルギー I まで加速するのに要する時間 t_I は次式で与えられる。

$$t_I = \frac{\{2m(I - E_{av})\}^{1/2}}{eF} \quad (2 \cdot 3)$$

$P(t_I)$ を時間 t_I の間に電子が衝突しない確率とし緩和時間を $\tau(E_{av})$ とすると、単位時間に衝突する確率は $1/\tau(E_{av})$ となる。よって単位時間に衝突を行う確率は

$$w = P(t_I) / \tau(E_{av}) \quad (2 \cdot 4)$$

となる。平均エネルギー E_{av} を持つ電子の移動度を $\mu(E_{av})$ すれば、電離係数 α は次式となる。

$$\alpha = P(t_I) / \tau(E_{av}) F \quad (2.5)$$

単一電子なだれによる破壊とするならば、電離係数の臨界値として

$$\alpha_c d = i \quad (2.6)$$

が得られる。ここで d は試料の厚さ、 i は破壊に要する最小の電離回数である。したがって破壊電界は次式となる。

$$F_c = \frac{P(t_I) d}{\tau(E_{av}) \mu(E_{av}) i} \quad (2.6)$$

次に $P(t)$ について求める。 $P(t+dt)$ は時間 t において衝突しない確率 $P(t)$ と続く dt の間に衝突しない確率 $(1-dt/\tau)$ の積である。すなわち

$$P(t+dt) = P(t) (1-dt/\tau) \quad (2.7)$$

$$\frac{dP(t)}{dt} = - \frac{P(t)}{\tau} \quad (2.8)$$

となり、解は

$$P(t_I) = \exp \left(- \int_0^{t_I} \frac{dt}{\tau} \right) \quad (2.10)$$

で与えられる。 τ は電子のエネルギーの関数で、加速とともに変化し、また $dv/dt = eF$ であるから、

$$P(t_I) = \exp \left(- \frac{m}{eF} \int_1^{v_2} v^2 \frac{dv}{\tau(E)} \right) \quad (2.11)$$

あるいは、 $dE/dt = mvdv/dt = (2mE)^{1/2} eF/m$ であるから

$$P(t_I) = \exp \left(- \left(\frac{m}{2} \right)^{1/2} \frac{1}{eF} \int_{E_{av}}^I \frac{dE}{E^{1/2} \tau(E)} \right) \quad (2.12)$$

$$= \exp\{ -H/F \} \quad (2.13)$$

$$H = \left(\frac{m}{2} \right)^{1/2} \frac{1}{e} \int_{E_{av}}^I \frac{dE}{E^{1/2} \tau(E)} \quad (2.14)$$

となる。(2.13), (2.14) 式を(2.7) 式に代入して整理すると

$$F_c \simeq \frac{H}{\ln [d/F_c \mu(E_{av}) \tau(E_{av}) i]} \quad (2.15)$$

が得られる。この式は厚さ効果より単一なだけ破壊機構による破壊であることを説明するのにしばしば用いられる。

一方、電子なだれによる破壊理論は、破壊遅れ時間の統計的ばらつきを説明し得る。Wijsmann - Furry⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾によれば1個の初期電子が陰極を出発して、 ℓ なる距離を走って後、 n 個のなだれに成長する確率 $P_n(\ell)$ は

$$P_n(\ell) \simeq \frac{1}{\bar{n}} \exp(-n/\bar{n}) \quad (2.16)$$

$$\bar{n} = \exp(\alpha \ell) \quad (2.17)$$

で与えられる。

したがって電子なだれが N_c (破壊が起る限界値) 以上に成長する確率 $K_{n_c}(\ell)$ は

$$K_{n_c}(\ell) = \int_{n_c}^{\infty} P_n(\ell) dn = \exp(-N_c/\bar{n}) \quad (2.18)$$

で与えられる。毎秒平均 ν_0 個の電子が出ると毎秒当り破壊の起る確率は $\nu_0 K_{n_c}(\ell)$ となる。初期電子がPoisson分布的に乱雑に出ると、電圧印加後 t 秒にしても破壊が起らない確率は

$$N(t) = \exp(-t/t_s) \quad (2.19)$$

$$t_s = 1/\nu_0 K_{n_c}(\ell) = \frac{1}{\nu_0} \cdot \exp(N_c/\bar{n}) \quad (2.20)$$

となる。ここで t_s は統計遅れ時間と呼ばれる。破壊に要する最小の時間を t_F とすれば

$$N(t) = \exp\{-(t-t_F)/t_s\} \quad (2 \cdot 21)$$

となる。単一電子なだれとすれば形成遅れ時間 t_F は

$$t_F = \ell / \mu F \quad (2 \cdot 22)$$

で与えられる。

このように単一電子なだれ理論においては統計遅れ時間 t_s の物理的意味を説明することができ、電極材料の種類（その仕事関数）に ν_0 は依存することから、いわゆる電極効果も説明し得る。

電子なだれ理論には以上で述べた単一電子なだれ理論の他に、初期電子を固体内に均一に存在する自由電子とする多電子なだれ理論があるが⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾，この理論では電極効果，厚さ効果などは存在し得ない。

iii) 電界放出破壊

固体試料の厚さが薄くなると電子なだれ機構による破壊であれば破壊電界が上昇するが，厚さが極端に薄くなるとその高い電界のために，充満帯の電子がトンネル効果により伝導帯ににじみ出し，伝導電子数が急増し格子系へのエネルギー注入が格子系を臨界温度まで上昇させ，破壊を引き起すとの理論である。この理論は Zener によって提案され⁽¹⁸⁾，Zener 破壊理論とも呼ばれる。この理論が適用されるのは誘電体薄膜もしくは半導体における PN 接合の破壊の場合である。

II) 熱破壊理論

i) 純熱破壊理論

固体絶縁物の室温における電気伝導度は極めて低いけれども，格子温度が十分高ければ電気伝導度も急激に上昇する。もし電圧印加による微少電流のジュ

ール熱が格子温度をあげ、そのため電流が増大しさらに格子温度を上昇させるような正帰置作用が働けば破壊が起ると考えられる。一般的には熱的平衡条件は次式であらわせる。⁽¹⁰⁾

$$C_v \frac{dT}{dt} - \text{div}(K \text{grad } T) = \sigma F^2 \quad (2 \cdot 23)$$

ここで、 C_v ：比熱、 T ：温度、 t ：時間、 K ：熱伝導率、 σ ：電気伝導率

電界の増加速度が遅く、(2・23)式の左辺第1項が無視できる場合は

$$-\text{div}(\text{grad } T) = \sigma F^2 \quad (2 \cdot 24)$$

が成立する。もし、電源からの注入エネルギーが熱拡散する量よりも多ければ

$$-\text{div}(\text{grad } T) < \sigma F^2 \quad (2 \cdot 25)$$

となり、格子温度の上昇が起り破壊に至る。

次に電圧がランプ関数的に上昇し短時間で破壊に至る場合の理論について述べる。この場合は(2・23)式の左辺第2項を省略でき次式となる。

$$C_v \frac{dT}{dt} = \sigma F^2 \quad (2 \cdot 26)$$

いま、導電率を次式で与える。

$$\sigma = \sigma_0 \exp(-\phi/KT) \quad (2 \cdot 27)$$

ここで、 σ_0 ：定数、 K ：ボルツマン定数、 ϕ ：活性化エネルギー

電界を

$$F = (F_c / t_c) t \quad (2 \cdot 28)$$

とすれば(t_c ：破壊時間)

$$\frac{dT}{dF} = \frac{t_c}{F_c} \cdot \frac{\sigma_0 F^2}{C_v} \exp(-\phi/KT) \quad (2 \cdot 29)$$

よって

$$\int_{T_0}^{T_m} \exp(\phi/KT) dT = \frac{t_c}{F_c} \int_0^{F_c} F^2 dF \quad (2 \cdot 30)$$

積分し、 $\phi \gg KT$, $T_m \gg T_0$ とすれば (T_m ; 融点) 破壊電界は

$$F_c \simeq \left(\frac{3 C_v K T_0^2}{\epsilon_0 \phi} \cdot \frac{1}{t_c} \right)^{1/2} \exp \left(-\frac{\phi}{2KT_0} \right) \quad (2 \cdot 31)$$

となる。

純熱破壊理論は固体内を流れる微小電流に基づくものであるから、電界や温度に依存する固体絶縁体の導電特性の解明が重要な問題である。Vermeer は Na^+ 分の多いガラスと無アルカリガラスの導電特性と破壊特性の関連から、ガラスの高温域では純熱破壊が起っていることを示した⁽¹⁹⁾。

ii) 集合電子近似理論

伝導電子が比較的高密度で、電子間の衝突が電子と格子間の衝突よりも頻繁になってくると高速度電子は他の電子にそのエネルギーを与え、電子のエネルギー分布は定常状態では Maxwellian 分布となり⁽²⁰⁾ 電子エネルギーは格子温度よりやや高い所で平衡となる。集合電子近似理論においては電界および電子間、電子と格子間の相互作用により、電子のエネルギー分布がいかに変化するかを Boltzmann の輸送方程式から論じ、破壊電界は電子温度の定常状態が得られず無限に増大する臨界の電界により定義される。一電子近似理論における電子が電界から得るエネルギー A と格子に与えるエネルギー B は電子のエネルギー分布関数で平均したものとなり、エネルギー平衡の式は次式で与えられる。

$$A(F, T_0, F) = \bar{B}(T_e, T_0) \quad (2 \cdot 32)$$

ここで T_e ; 電子温度

いま、伝導電子が T_0 より破壊電界 F_c に相当する電子温度 T_c まで上昇するときの電子温度 T の変化は

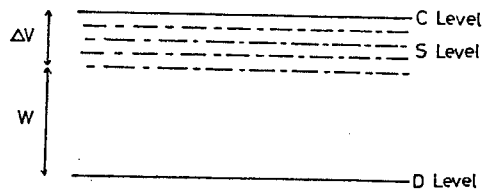
$$\frac{d}{dt} \left(\frac{3}{2} KT_e \right) = A(F, T_e, T_0) - \bar{B}(T_e, T_0) \quad (2 \cdot 33)$$

で与えられ、これから求められる温度上昇の時定数は約 10^{-10} S という非常に短い時間となる。したがってこの理論による破壊遅れ時間は極めて短いものとなる。

Boltzmann 方程式により (2・33) 式の解を求めるのに伝導電子のエネルギー伝達の仕方の異なる二つの方法がある。一つは単結晶固体に、他の一つは不純物準位を多く含む結晶体あるいは無定形固体に適用される。後者の場合、非晶体に適用し得る理論として重要で、この理論を提案した Fröhlich に従い⁽²⁰⁾、以下に述べる。

帯理論の概念を用い (2・2) 図に示されるようなエネルギーダイアグラムを考える。

C レベルは伝導帯、S レベルは浅いトラップ、D レベルは深いトラップと考えることができる。C レベル、S レベル、D レベルの電子密度をそれぞれ



n_c, n_s, n_d とする。

(2・2) 図 非晶体のバンドモデル

$$KT \ll \Delta V \ll W \quad (2・34)$$

とすると (ΔV は S レベルの巾, W は S レベルの底と D レベルのエネルギー差)

$$n_c = n_s \frac{N_c}{N_s} \cdot \exp(-\Delta V/KT) \quad (2・35)$$

が得られる。(N_c, N_s は C レベル, S レベルの底の部分の状態密度)

電界よりの電子の得るエネルギーは τ_c を伝導電子の緩和時間とすれば、

$$A(F, T_e, T_0) = n_c \frac{e^2 \tau_c}{m} F^2 \quad (2・36)$$

で表わされる。一方、格子に与えられるエネルギーは次式で表わされる。

$$B(T, T_0) = h\nu \Sigma (W_e - W_a) \quad (2・37)$$

ここで、 W_e はフォノンの放出確率、 W_a はフォノン吸収確率である。

$P(E)$ を電子の遷移確率とすれば、 W_e 、 W_a は次式で与えられる。

$$W_e = P(E) f_0(E) n(T_0) \quad (2.38)$$

$$W_a = P(E) f_0(E+h\nu) \{ n(T_0) + 1 \} \quad (2.39)$$

ここで $f_0(E)$ は Maxwell の分布関数、 $n(T_0)$ はフォノン数である。

$1/\tau_s$ (τ_s はトラップ電子の緩和時間) が $P(E)$ の平均値とすれば

$$n_s/\tau_s = \sum P(E) f_0(E) \quad (2.40)$$

となり、 $B(T_e, T_0)$ は、

$$B(T_e, T_0) = \frac{h\nu N_s}{\tau_s N_c} n(T_0) \exp(\Delta V/KT) \{ \exp(h\nu/KT_0 - h\nu/KT) - 1 \} \quad (2.41)$$

となる。 $A(F, T_e, T_0) = B(T_e, T_0)$ の条件が成立するならば

$$DF^2 \exp(-\Delta V/KT) = \exp(h\nu/KT_0 - h\nu/KT) - 1 \quad (2.42)$$

$$D = \frac{e^2 \tau_c \tau_s N_c}{mh\nu n(T_0) N_s} \quad (2.43)$$

が平衡の条件となる。臨界の電界を破壊電界とすれば

$$F_c = \left(\frac{h\nu}{\epsilon D \Delta V} \right)^{1/2} \exp\left(\frac{\Delta V}{2KT_0} \right) \quad (2.44)$$

となる。(ϵ ; 自然対数の底)

この理論においては、温度上昇とともに破壊値が低下する高温領域での破壊特性を説明することができ、破壊遅れ時間が純熱破壊などに比べ極めて短く、厚さ効果がないなどの特徴がある。

2.2 実用状態における固体絶縁体の破壊

固体絶縁物が実際の電力系統や電気機器に用いられる場合、前節で述べられたような破壊理論に基づく理論値あるいは理論を実証する基礎的研究での実験値に比べ、はるかに低い平均電界のもとで使用されている。これは長時間電圧が印加されることにより種々の2次的因子が加算されるためである。この根本をなすのは、電界の不平等性のため部分放電が発生するためで、これにより材料の劣化や局部破壊が起り、ついには全路破壊が生じるものと考えられる。この様な破壊には表面の放電によるトラッキング破壊やアーク破壊も含まれるが、固体内を樹枝状に進展する局部破壊、いわゆるトリッキング破壊が重要で **Mason**⁽²¹⁾や**Kitchin**⁽²²⁾らの研究以来、大きな関心と呼ばれ、現在も数多くの研究が行なわれている⁽²³⁾⁻⁽²⁶⁾。実験室でのその研究の多くはトリッキングの発生と進展を加速するため、針電極等の鋭利な電極を用いるとか⁽²¹⁾⁽²³⁾⁽²⁴⁾⁽²⁵⁾、人工的にボイドを与えて実験を行なっている⁽²¹⁾⁽²⁷⁾。前者の方法はあらかじめ集中電界を与える方法であるが、後者においてもボイドの端部を尖鋭にして部分放電により形成された空間電荷による電界集中を大きくする方法がよく用いられる。これらのトリッキングの発生と進展はとりもなおさず電界の集中による部分放電に基づく破壊であることを意味している。実用状態においても多くの場合、ボイド等の存在により電界の不整が生じ部分放電が繰り返えされ材料の局部破壊を起し、さらにこの局部破壊の発生が電界の集中度を高め、トリッキングの進展を加速すると思われる。このように電界の歪みによる部分放電の発生がトリッキング発生の原因であるが、複合誘電体における破壊の場合も同様なことがいえる。固体絶縁材料を用いる場合、単体として用いる場合もあるが、気体および液体誘電体との複合体として用いる場合が非常に多い。この場合、誘電率の差による電界の集中および一般に気体、液体絶縁体は固体絶縁体に比べその破壊強度が低いため、この領域に部分放電が

生じ、その放電エネルギーが固体に損傷を与える。先に述べたボイドからのトリ-の発生は、気体と固体の複合誘電体における破壊ともいえる。液体と固体の複合体の場合は、液体中での放電エネルギーが気体中のそれより大きく、固体に与える損傷も大きい⁽²⁸⁾。また液体中に発生した放電路先端の電界強度が極めて高くなることも予想され⁽²⁹⁾、固体内への侵入と、それに与える界面の影響が問題となる。

実用状態では様々な因子が複雑にからみ合っているので、問題の解決には困難な面が多くあるが、単に現象論的理解にとどまらず、現代の高度に発達してきた物理化学的技術を用い、物理的基礎に根ざした理解により、一つ一つの問題を解決して行く努力が大切であると考ええる。

2.3 文 献

- (1) K.W.Wagner; Elec Engr, Vol.4, p.1034 (1922)
- (2) W.Rogowski; Arch. Electrotech, Vol.13, p.153 (1924)
- (3) Von. Hippel; Z. Phys, Vol.67, p.48 (1931)
- (4) Von. Hippel; Z. Phys, Vol.68, p.309 (1931)
- (5) Von. Hippel; Erg. exa. Naturwiss Vol.14, p.79 (1935)
- (6) H. Fröhlich; Proc. Roy. Soc. Vol.A.160 p.230 (1937)
- (7) W. Franz; Z. Phys. Vol.113 p.607 (1939)
- (8) F. Seitz; Phys. Rev. Vol.76 p.1376 (1949)
- (9) H. Fröhlich; Proc. Roy. Soc., Vol.A188 p.521 (1947)
- (10) たとえば, S.Whitehead; Dielectric Breakdown of Solids (1951)
Clavenclo Press, Oxford
J.J.O Dwyer; The Theory of Dielectric Breakdown of Solids

(1964)

Clarendon Press, Oxford

- (11) E. Offenbacher and H. B. Callen; Phys. Rev. Vol. 90 p. 401 (1953)
- (12) Von Hippel and G. M. Lee; Phys. Rev. Vol. 59 p. 824 (1941)
- (13) R. Stratton; Progress in Dielectrics Vol. 3 p. 640 (1952)
- (14) Y. Inuishi and T. Suita; J. Phys. Soc. Japan Vol. 7 p. 640 (1952)
- (15) A. R. Wijsman; Phys. Rev. Vol. 75 p. 833 (1949)
- (16) W. R. Heller; Phys. Rev. Vol. 84 p. 1130 (1951)
- (17) W. Franz; Z. Phys. Vol. 132, p. 285 (1952)
- (18) C. Zener; Proc. Roy. Soc. Vol. A; 145 p. 523 (1934)
- (19) J. Vermeeri; Physica Vol. 20 p. 313 (1954)
- (20) H. Fröhlich and B. V. Paranjape; Proc. Phys. Soc. Vol. B; 69
p. 21 (1956)
- (21) J. H. Mason; Proc. Instn. Elect. Engrs. Vol. 98, Pt I, p. 44 (1951)
- (22) D. W. Kitchin and O. S. Pratt; AIEE, Pt III Vol. 77 p. 180 (1958)
- (23) 縄田, 河村, 家田; 電気学会論文誌 Vol. 95.A P. 423 (昭50)
- (24) 吉村, 能登, 電気学会論文誌 Vol. 93 A p. 413 (昭48)
- (25) Y. Shibuya, S. Zoledziowski and J. H. Calderwood; IEEE Trans,
Vol. PAS-96 p. 198 (1977)
- (26) E. J. McMahon; IEEE Trans, Electr Insul Vol. EI-13 p. 277
(1978)
- (27) 田中; 電中研技報 No. 178006 (昭53)
- (28) 井関, 倉橋; 電学誌 Vol. 181 p. 1060 (昭36)
- (29) 曾称, 鳥山; 電気学会放電研資料 ED-73-9 (昭48-2)

第 3 章 高分子フィルムの破壊遅れ時間とその温度特性

3.1 緒 言

固体絶縁体の破壊機構を明らかにする方法としては、破壊強度の温度依存性⁽¹¹⁾⁻⁽¹⁴⁾、厚さ効果⁽⁵⁾⁽⁶⁾、電極効果⁽⁷⁾等を検証する方法があるが、破壊遅れ時間を測定する方法も極めて有力な方法である⁽⁸⁾と思われる。パルス立ち上り時間を速め非常に短い時間領域で実験を行えば、絶縁破壊の研究においてしばしば問題となる空間電荷の形成等の二次的効果の影響を少なくすることができる。気体に対しての破壊遅れ時間の測定実験は多いが⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾、固体については Rogowski がマイカについてその破壊遅れ時間が 10^{-7} S 以下になり得ることを見出し⁽¹¹⁾、電子的過程に基づく破壊機構の可能性を示した。その後川村らは⁽¹²⁾マイカ、NaCl についてその統計遅れ時間の厚さ依存性から Seitz の理論⁽¹³⁾に検討を加え、犬石らは KCl、イオウに対して実験を行なっている⁽⁷⁾。高分子絶縁物に対しては Cooper らの研究⁽¹⁴⁾がある。

しかし、本論文において報告するナノ秒領域での破壊遅れの研究は、固体絶縁体に対しては皆無である。用いたパルスの立ち上り時間が約 1 ns (パルス巾, 100 ns) と非常に短い点は、破壊遅れ時間の最小値を求める上で都合がよくまた同一条件において個々の試料の破壊遅れ時間を測定することにより、破壊遅れ時間の統計的分布もしくは統計遅れ時間を知ることができる。このような破壊遅れ時間の基礎的データを得ることは、破壊機構の物理的過程を明らかにする上で、有力な手がかりとなるとと思われる。さらに広範囲の測定温度で実験を遂行することや、電極材料の種類を変える等の条件の変化に対して、破壊遅れ時間の特性がいかに変化するかを知ることができれば、なおいっそう破壊機構の解明の助けになると考える。

3.2 実験装置と実験方法

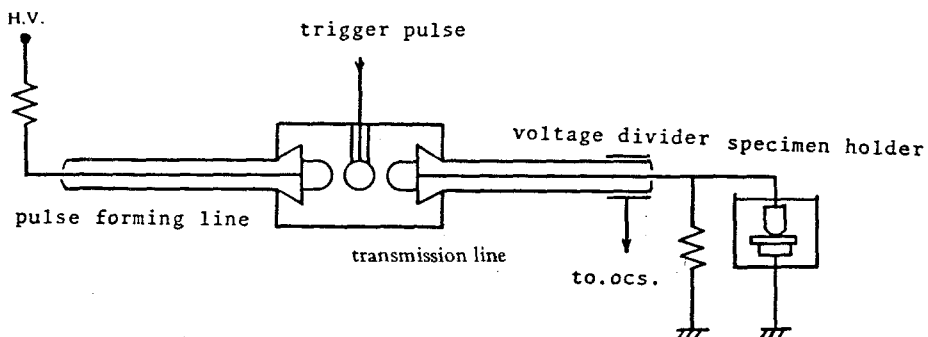
実験に使用したパルス発生器は Fletcher の開発した⁽⁹⁾ 3点ギャップ方式によるもので、(3・1)図に示されるように高圧直流電源、高圧抵抗、パルス整形同軸ケーブル、高気圧3点ギャップスイッチ、高圧トリガーパルス発生装置、パルス伝送同軸ケーブル、容量分圧器、整合抵抗、試料台から構成されている。その基本動作について説明する。高圧直流電源により高圧抵抗を通してパルス整形ケーブルを所定の電圧 V に充電する。

高圧トリガーパルス発生装置を動作させ、高気圧3点ギャップスイッチ〔(3・2)図参照〕の中央のトリガー電極に充電電圧とは逆極性の高圧トリガーパルスを加える。パルス整形ケーブル側電極とトリガー電極との間隙、 g_1 は電圧 V では安定であったが、トリガーパルスの波高値と電圧 V との和が g_1 に対して過電圧であれば g_1 は放電する。そのためトリガー電極の電位はほぼ V となる。トリガー電極と伝送ケーブル側電極の間隙、 g_2 は g_1 の $1/3 \sim 1/4$ 程度に調整しているので、 g_2 はただちに放電を起し、スイッチ動作は完了する。このことはパルス整形ケーブルに充電された電圧 V を起電力とする階段関数の電源が伝送ケーブルに接続されたことを意味する。いま、現想的に $T=0$ でスイッチされた点から伝送ケーブル側をみたときのインピーダンス Z_{in} は分布定数回路理論により次式で与えられる。

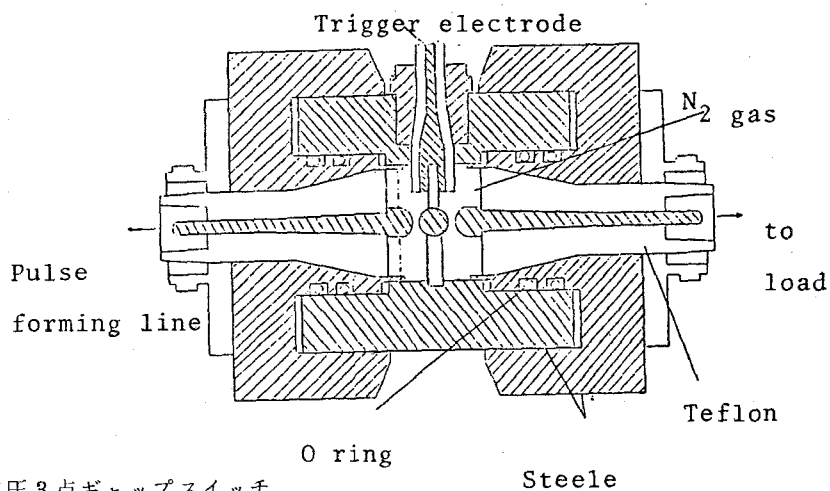
$$Z_{in} = Z_0 \frac{1 + \rho_1 e^{-2PT\ell}}{1 - \rho_1 e^{-2PT\ell}} \quad (3.1)$$

ここで、 $T = \sqrt{LC}$ (L , C はそれぞれ伝送ケーブルのインダクタンスとキャパシタンス) ℓ はパルス整形ケーブルの長さ、 ρ_1 は開放端の電圧反射係数、 Z_0 はケーブルの特性インピーダンスである。

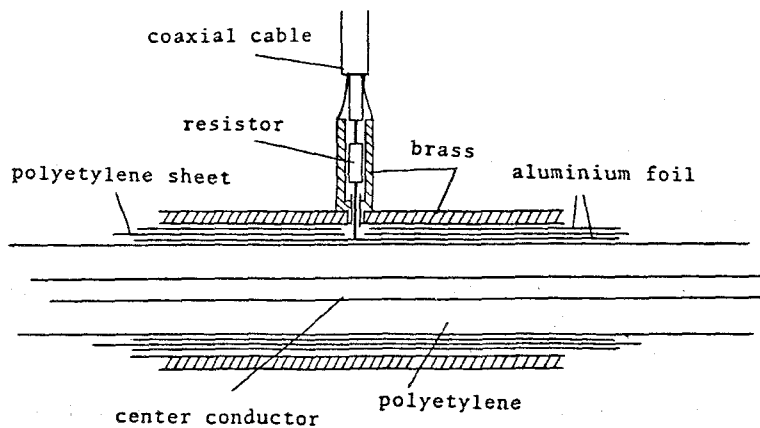
便宜上整合抵抗のインピーダンスを Z とすれば、現れる信号は



(・1) 図 ns パルス発生器



(3・2) 図 高気圧3点ギャップスイッチ



(3・3) 図 容量分圧器

$$V_B = \frac{Z}{Z + Z_{in}} V \quad (3.2)$$

となる。

電源からみた伝送ケーブルの遠端は開放であると考え得るから、 $\rho_1 = 1$ である、したがって V_B は次式のようにになる。

$$V_B = \frac{\frac{Z}{Z + Z_0} (1 - e^{-2PT\ell})}{1 - \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} e^{-2PT\ell}} \quad (3.3)$$

$Z = Z_0$ であれば

$$V_B = (1 - e^{-2PT\ell}) \frac{V}{2} \quad (3.4)$$

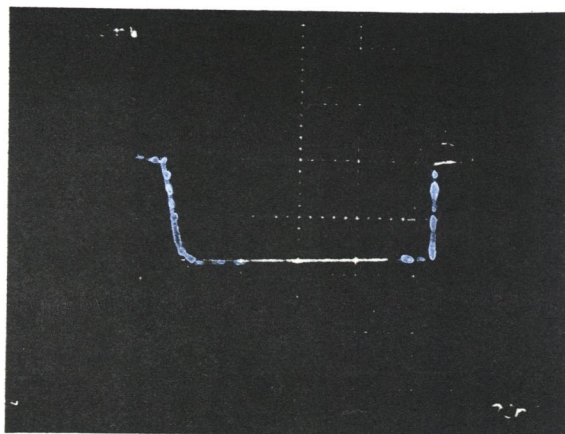
となり、ラプラス逆変換すれば、出力パルスは方形波となり、その振巾は $V/2$ 継続時間は $2T\ell$ となる。

もし、整合抵抗を用いず、 $Z = \infty$ とすれば、振巾 v 、継続時間 $2T\ell$ の方形波が繰り返えられる。

以上のように伝送ケーブル終端に配置されている試料には、 $V/2$ の単一パルス、もしくは V の繰り返しパルスを印加し得るが、破壊遅れ時間の測定には波形の観測が必要となる。そのための分圧器として (3.3) 図に示されてるような容量分圧器を製作した。外側の同軸円筒は、アルミ箔と厚さ $10 \mu\text{m}$ のポリエチレンシートおよび真ちゅう円筒からなっている。この分圧器により約 $1/500$ に分圧された信号は同軸ケーブルを通してオシロスコープ (Tektronix - 7904, 500 MHz) にて観測する。電圧パルスの波形の例を (3.4) 図に示す。
なお、加えられる電圧パルスはケーブルを終端を無限大にし、繰り返しパルスにして用いた方がパルス波高値を大きくし得るので、多くの場合、繰り返

しパルス（約 $15 \mu s$ で減衰）の初発のパルスのみを観測した。

絶縁物に過電圧を加えたとき、破壊が起るまでに有限の時間を要する。また厚さ一定の同一とみなし得る試料に対し、同一電圧パルスを印加した場合、その破壊遅れ時間は必ずしも一定でなく、大きな



(3.4) 図 電圧波形

ばらつきを示すことが多い。同一条件での実験において、電圧パルスを印加した後、時間 t までに破壊が起らなかった試料数を n_t とし、全試料数を n とした時、 $\log n_t/n$ と時間の関係をプロットすれば（いわゆる“ラウエプロット”）直線関係が成立することがよくある。すなわち次式が成立する。

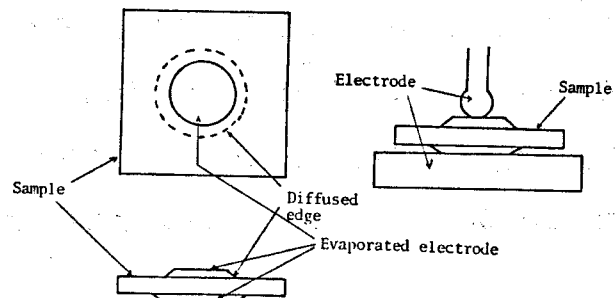
$$n_t/n = \exp\left(-\frac{t-t_F}{t_s}\right) \quad (3.5)$$

ここで t_F は形成遅れ時間、 t_s は統計遅れ時間である。

得られた実測のラウエプロットの直線性が良ければ、その直線から $n_t/n = 100\%$ となる時間を形成遅れ時間 t_F 、 $n_t/n = 37\%$ となる時間を $t_F + t_s$ とし、統計遅れ時間 t_s を求めることができる。本実験において得られたラウエプロットのすべてが、その直線性が良いとはいえないが、統計遅れ時間は単に破壊強度の目安と考え、得られたプロットの最小自乗法による近似直線を求め、(3.5) 式を適用して求めた。しかし、形成遅れ時間については、(3.5) 式を適用し求めることは、その絶対量が小さいため誤差が大きく、再現性も乏しいので、今回は、同一条件で 20~25 個に対し行なった実験で最も遅れ時間の短かったものを t_F として採用した。

用いた試料はポリエチレン（高密度PE，スミカセンハード，低密度PE，スミカセン），ポリエチレンテレフタレート（PET）（ルミナー），ポリカーボネイト（PC）（マクロホールKG）である。これらの試料に金またはアルミニウムを（3・5）図に示すように真空蒸着した。蒸着電極端部はedge放電を防ぐため，diffused edge 形になるようくふうした。平板電極と球側蒸着電極の間での油を介した破壊を防ぐため，蒸着電極の大きさは上下非対称としている。また，蒸着電極保護のため，その中央にはシルバーペーストを塗布している。

温度制御は， 77°K は液体窒素中で測定し， 170°K はシリコン油中に試料を組み入れたセルを液体窒素中に1時間放置して，試料近傍が



（3・5）図 電極構成

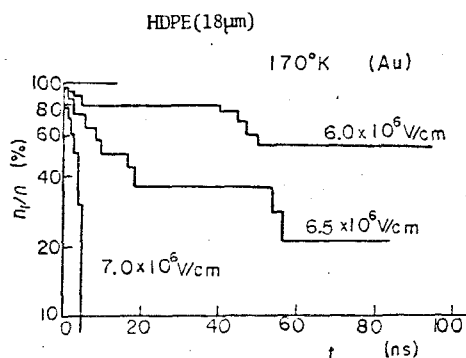
170°K に飽和することをおらかじめ熱電対により確かめた上で行なった。 215°K は試料をパラフィンでモールドしたものを，ドライアイスとメチルコール混合体中で放置した後測定を行なった。高温部は熱制御し得る恒温油槽中に組み入れたセルを放置して，試料近傍が指定の温度になっていることを水銀温度計で確認したのち測定した。

3.3 実験結果と検討

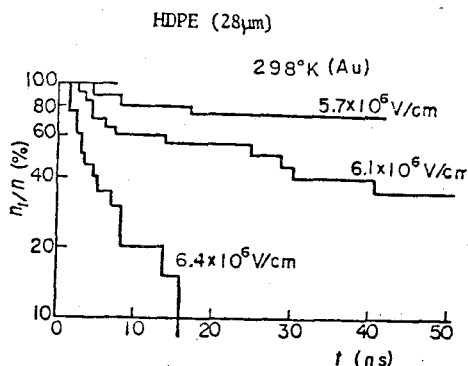
〔 3.3.1 〕 破壊遅れ時間と温度特性

得られたラウエプロットの例を示す。（3・6）図，（3・7）図，（3・8）図には高密度PE（ $18\mu\text{m}$ または $28\mu\text{m}$ ）のそれぞれ 170°K ， 298°K ， 373K

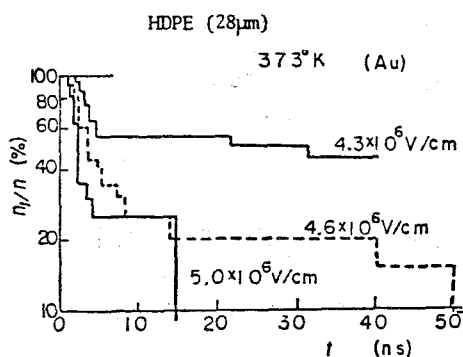
の結果を示す。(3・9)図,(3・10)図には298°KにおけるPETおよびPCの結果を示す。各プロットは多くの場合、近似的に直線になるが、印加電界が低くプロットの傾きが小さい場合、直線は途中で長時間側にずれる傾向をみせる。また、印加電界のわずかな変化に対し、プロットの勾配は大きく変化し電界が高くなると勾配は大きくなる。なお $t=0$ におけるプロットの n_t/n の値が100%以下の場合〔例えば(3・6)図〕は、破壊遅れ時間がパルスの立ち上がり時間(1 ns)以下であり、0.5 ns 以下と推定される試料が存在することを示している。



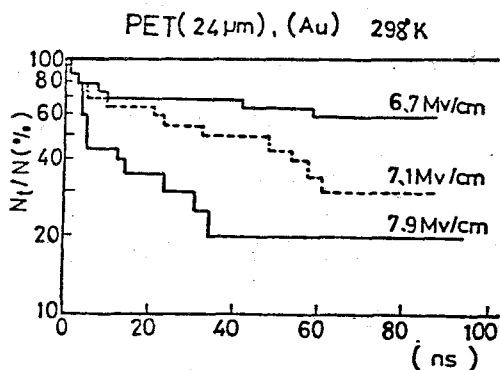
(3・6) 図 ラウエプロット図



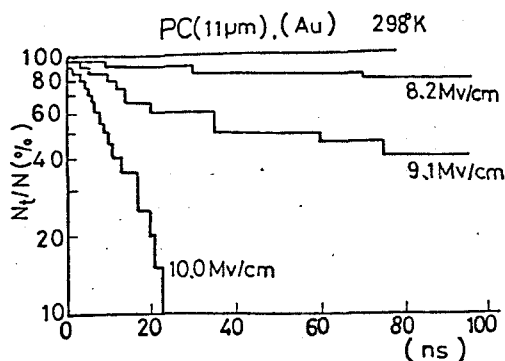
(3・7) 図 ラウエプロット図



(3・8) 図 ラウエプロット図



(3・9) 図 ラウエプロット図

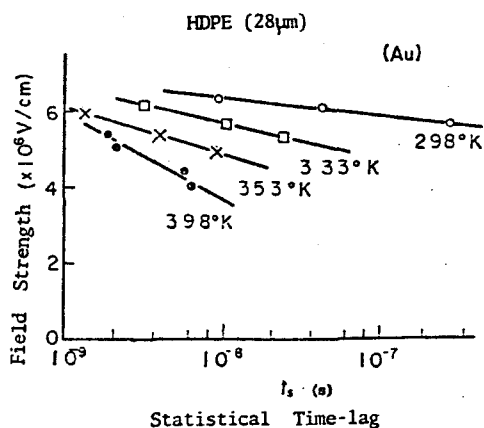


(3.10) 図 ラウエプロット図

これらのプロットより、前節で述べたようにして統計遅れ時間を求めた。得られた t_s と電界強度との関係を、高密度ポリエチレンの高温部について(3.11)図に例として示した。この図において、同一条件では電界強度が高くなれば t_s は急激に小さくなっていくことがわかる。 t_s は(3.5)式から推察し得るようにラウエプロットの勾配に逆比例するから、 t_s の減少は破壊確率が高いことを間接的に示している。したがって電界強度の上昇とともに t_s が減少するのは当然の結果である。同様に同一電界強度ならば温度上昇とともに t_s が小さくなっているから、温度上昇とともに破壊強度が下がっていくことがわかる。

(3.11)図に示されるような電界強度と統計遅れ時間の関係から、統計遅れ時間 $t_s = 10^{-8}$ S となる電界強度を求め、その温度特性を高密度PEについて示せば(3.12)図のようになる。この電界強度は形成遅れ時間を無視し得るとして、巾 10^{-8} S の単一パルスによる破壊実験を行えば、この電界強度では63%の確率で破壊が生じることを意味する。すなわち、 10^{-8} S のパルスによ

これらのプロットより、前節で述べたようにして統計遅れ時間を求めた。得られた t_s と電界強度との関係を、高密度ポリエチレンの高温部について(3.11)図に例として示した。この図において、同一条件では電界強度が高くなれば t_s は急激に小さくなっていくことがわかる。 t_s は(3.5)式

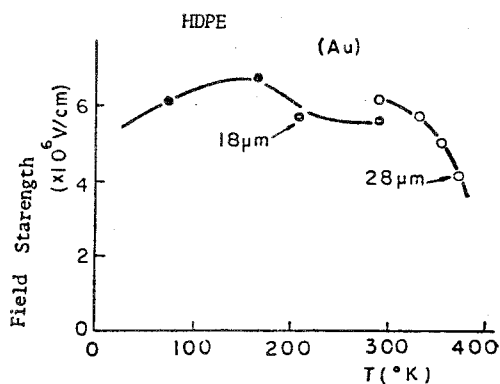


(3.11) 図 統計遅れ時間と電界強度の関係

る63%破壊電界(F_B)意味する。(3・12)図から170°K以下で $\partial F_B / \partial T \geq 0$, それ以上では $\partial F_B / \partial T \leq 0$ となることがわかる。この結果は宮入らがポリエチレンに対し行なったインパルス破壊の結果と類似のものである。なおこの図においては, 室温以上では厚さ28 μm , 室温以下では18 μm の試料で実験が行なわれていることが示されている。室温において18 μm の試料の方が28 μm の試料よりもその破壊電界強度が低くなっている。この原因は, 試料の表面あらさが試料の厚さにかかわらず一定であるため, 試料の厚さが小さい18 μm の試料の方が表面のあらさの占める割合が大きく, 実質的な電界強度は28 μm の試料の場合より大きくなっているためと考えた。しかし, 表面あらさの数値を知ることができないので細かい議論はできない。

[3・3・2] 電極効果

これまでAu蒸着電極試料のみの結果について述べてきたが, 蒸着電極をAuからAlに変えれば, その仕事関数の差により電極からの電子注入数に差が生じ, 統計遅れ時間

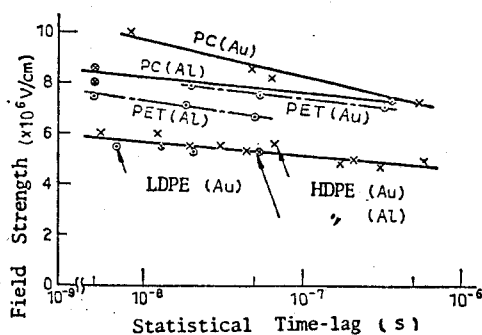


(3・12) 図 統計遅れ時間 $t_s = 10^{-8}$ s における破壊強度の温度依存性

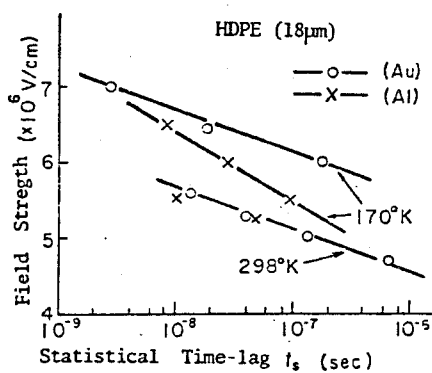
(3・13)図 に室温における各試料

とAl電極試料の電界強度と統計遅れ時間との関係を示した。この図より, 室温(298°K)ではPETおよびPCではAl電極試料の方がAu電極試料より同一電界強度なら統計遅れ時間は小さい結果が得られたことがわかる。これに対し高密度PEでは結果に差がみられないことが明らかとなった。しかし, (3・14)図においては高密度PEも, 室温では結果に差がないが, 170°Kでは,

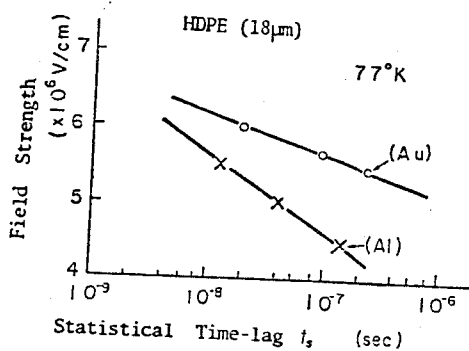
Al 電極試料の方が Au 電極試料よりも統計遅れ時間が小さくなることが示されている。また (3・15) 図で示されるように 77°K においても同様な結果が得られ、いわゆる、電極効果が存在することが示された。しかし、215°K 以上の温度では電極効果が存在しないことが判明している。これに対し、PET では



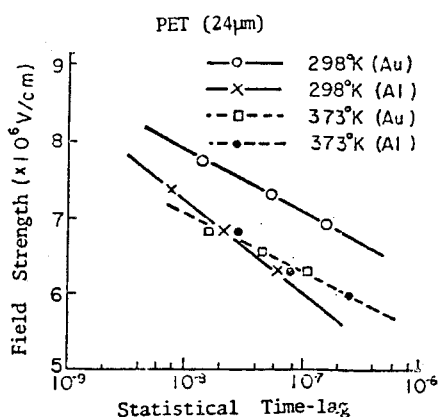
(3・13) 図 統計遅れ時間の電極効果



(3・14) 図 統計遅れ時間の電極効果



(3・15) 図 統計遅れ時間の電極効果



(3・16) 図 統計遅れ時間の電極効果

(3・16) 図に示されているように室温で電極効果が存在していたものが、373°Kの高温ではその効果が消える。

これらの結果にみられる電極効果,すなわち,電極材料による統計遅れ時間の差は,Auの仕事関数($\phi_{Au}=4.9\text{ eV}$)とAlの仕事関数($\phi_{Al}=4.4\text{ eV}$)との差によるものと考えられる。単一電子なだれによる破壊の場合,統計遅れ時間は(2・11)式で与えられる。再記すると

$$t_s = \frac{1}{\nu_0} \cdot \exp(n_e / \bar{n}) \quad (3・6)$$

である。したがって単位時間当り注入される初期電子数に逆比例する。印加電界は極めて高いので電子の注入機構は電界放出機構が支配的であると思われる。

電界放出機構による注入電子数は次式で与えられる⁽¹⁵⁾。

$$\nu_0 = \frac{2.2 e^2 F^2}{8\pi h \phi} \exp\left(-\frac{8\pi\sqrt{2m\phi^3}}{2.96 h e F}\right) \quad (3・7)$$

ここで, ϕ は電極と試料間の仕事関数である。 ϕ は次式で与えられる。

$$\phi = \phi_m - \chi_i \quad (3・8)$$

ここで, ϕ_m ; 電極金属の仕事関数, χ_i ; 試料の電子親和度

いま, PET の電子親和度を 2.0 eV ⁽¹⁶⁾ とすると, Au電極の場合 $\phi_{Au}=4.9\text{ eV}$ であるから, ϕ は 2.9 eV , Al 電極の場合は 2.4 eV となる。(3・7) 式を用いて, Al 電極の場合に注入された初期電子数 $\nu_0(Al)$ と, Au 電極の場合に注入される初期電子数 $\nu_0(Au)$ との比 $\nu_0(Al)/\nu_0(Au)$ を求めると 4.0×10^4 となり, Al 電極から注入される電子数の方がはるかに多い。しかし, 得られた統計遅れ時間の差はそれほど大きくない。これらは蒸着電極と試料の界面の問題が複雑にからんでいると思われるが, いずれにしろ電極の差は注入電子数の差を意味し統計遅れ時間の結果に差があるならば, 破壊機構には電極から注入される初期

電子が関与しているといえる。

PEの215°K以上での結果，あるいはPETの373°Kの結果のように，電極効果が温度の上昇により消失する点について考察してみる。PEのような高分子の高電界電気伝導は，Poole-Frenkel効果に⁽¹⁵⁾ よって試料内部から放出された電子によるものとされている。PEの場合，田中らによれば伝導帯の下2evのところにあるドナー準位から放出された電子が，ポッピングしながら移動している⁽¹⁷⁾としている。ところで本実験におけるような短時間で破壊に至るような著しい高電界の場合は，内部より放出される電子数も非常に多いと考えることができる。試料内部より電子が放出される確率は，温度上昇とともに指数関数的に増加するので，ある温度以上では電極より注入される電子数より試料内部から放出される電子数の方が多くなり，試料内部より放出される電子の方が破壊に寄与する可能性が大きくなると考えられる。高密度PEの場合170°Kではその効果がみられず，また，PETの場合では，室温(298°K)では電極効果が存在したのに対し，373°Kではその効果が消失した事実は，初期電子の発生機構の違いによるものと考えられる。

また，このような電極効果の消失する場合と分子鎖運動形態の変化する温度T_g(PEでは230°K，PETでは370°K)が比較的近い事実も分子鎖形態の変化が破壊機構に影響を与える⁽¹⁸⁾可能性を示していると思われる。

(3・12) 図において，電極効果の消失する215°K以上において $\partial F_B / \partial T \leq 0$ となっているのは，温度の増加とともに，試料内部から放出される初期電子数の増加によるとみなし得る。電極効果の存在する低温領域においても電極効果の消失する高温領域においても，近似的に(3・5)式が成立するから，いずれも電子なだれによる破壊の可能性あると思われる。

ここで，他の破壊機構に破壊の可能性を考えてみる。純熱破壊においては

このような短時間での破壊は考え難い。Frölich の集合電子熱破壊理論⁽¹⁹⁾によれば、ns 領域の破壊は可能であるが、(3・5)式を満すような破壊遅れ時間のばらつきを説明できず、また電極効果の存在は全くあり得ない。

[3・3・3] 形成遅れ時間と移動度

前節で述べたとおり、本実験においては形成遅れ時間は同一条件で行なった測定(試料数20~25個)で最も遅れ時間の短かったものを形成遅れ時間 t_F として採用した。

77°K, 170°Kでの高密度PEの形成遅れ時間は極めて小さく、0.5 ns 以下である。室温(298°K)では $6.4 \times 10^6 \text{ V/cm}$ において、373°Kでは $4.6 \sim 5.0 \times 10^6 \text{ V/cm}$ において形成遅れ時間 $t_F = 1 \text{ ns}$ を得た。単一電子なだれ破壊における理論⁽⁸⁾⁽¹³⁾から得られる次式を用いて移動度を求め、(3・1)表にまとめた。

$$\mu = d / F t_F \quad (3.9)$$

ここで、 μ : 電子の移動度、 d ; 試料の厚さ

(3・1)表によれば、298°K, $5.7 \times 10^6 \text{ V/cm}$ のとき最小値 $0.12 \text{ cm}^2 / \text{s} \cdot \text{V}$ であり、他の場合はいずれもそれ以上である。ところに一般に高分子の電気伝導はホッピングモデル

厚さ	温度	電界強度 ($\times 10^6 \text{ V/cm}$)	形成遅れ時間 (ns)	移動度 ($\text{cm}^2 / \text{s} \cdot \text{V}$)
18 μm	77K	5.5~6.0	0.5 以下	0.65 以上
28 μm	298K	5.7	4	0.12
		6.0	2.5	0.18
		6.4	1	0.44
	373K	4.3	2	0.33
		4.6	1	0.61
		5.0	1	0.56

により考えられている⁽²⁰⁾。しかし、

(3・1)表 HDPE の形成遅れ時間と移動度

その理論的性質から考えて、その電子の移動度は $10^{-2} \text{ cm}^2 / \text{s} \cdot \text{V}$ 以下であるとされている。また実験結果においても、 $10^{-3} \sim 10^{-12} \text{ cm}^2 / \text{s} \cdot \text{V}$ とその理論を裏づけている。しかるに、本実験において得られた移動度ははるかに大きくむしろ結晶体に適用されるバンドモデルにより得られる値に近いものである。

しかし、比較的結晶性が良いとされている P E においても結晶の乱れは大きくバンドモデルを単純に適用することはできない。高電界中のキャリアの移動がホッピングモデルによるものであるとすれば、本実験において得た移動度が一般に得られる値よりも大きい理由を検討してみる必要がある。

ホッピングモデルによる移動度が小さくなる原因は、ある状態に電子がトラップされる期間に大きく支配されるためである。見かけ上の移動度 μ_a は真の移動度 μ_b と次のような関係を持つ。

$$\mu_a = \mu_b \exp(-E_T/KT) \quad (3 \cdot 10)$$

ここで、 E_T ; トラップの深さ

真の移動度 μ_b はトラップから励起されたキャリアが伝導帯中を走るときの移動度と考えている。また、指数関数の項はキャリアがトラップから伝導帯中へ励起される確率を表している。トラップの深さは高電界中では Poole-Frenkel 効果により、見かけ上次式のように小さくなる。⁽⁵⁾

$$E'_T = E_T - \left(\frac{e^3 F}{\pi \epsilon} \right) \quad (3 \cdot 11)$$

ここで、 E_T ; 見かけ上のトラップの深さ、 ϵ ; 誘電率

特に本実験におけるように著しい高電界ではその効果も大きく、 μ_a は μ_b に近づいてくる。これらのことはあくまで統計的な問題であり、個々の電子に着目すれば長時間トラップされた状態にある電子もあれば、伝導帯中を長い距離の間トラップされることなく走る電子も存在し得ると考えられる。本実験においては非常に短時間で破壊が完了し得るような高電界を印加しているのだから、そのような高速電子の存在する確率も高く、このような高いエネルギーを持つ高速電子が格子原子との衝突において新たな電子を産みだし、電子なだれに発展し、破壊のような非線形現象が起ると考えられる。したがって、本実

験において得られた移動度はホッピングしたり，トラップされたりしてさまざまな速度で走る電子の中で，伝導帯のようなエネルギー状態密度の高いエネルギー状態中を，格子原子との衝突で新たな電子を産み出し得るような高速で走る電子のみの移動度を検出していると考えられる。よって，バンドモデルにより得られる移動度に近い値を持ち得ると考えられる。

上では形成遅れ時間 t_f から重要な物理量である電子の移動度を求め，またその値が大きい理由について述べたが，ここで注意すべきことは，単一電子なだれ理論に基づく破壊であると仮定して(3・9)式を適用して移動度を求めている点である。しかし，電極効果の存在しない温度領域では，固体内から放出された電子を初期電子とするいくつかの電子なだれが協力して破壊に導く可能性がある。この場合，(3・9)式における試料の厚さ d は形成された電子なだれの距離 L ($\leq d$) に置換せねばならない。しかし，(3・1)表に示した値は，すべて $L = d$ として求めているので，電極効果の存在しない領域での μ の値は実際よりも大きな値となっている可能性がある。室温において，電界強度が増すにつれて，得られる形成遅れ時間が小さくなっているのも，より多くの電子なだれの協力によるとするならば，過電圧の度合いがさらに増せば，形成遅れ時間は急激に減少し，その測定はより困難になると思われる。

電極効果の存在する低温領域においては，電子なだれの初期電子は電極より注入される電子であるため(3・9)式をそのまま適用し得るにもかかわらず，(3・1)表に示されるようにその移動度は，電極効果のない領域でのそれよりもさらに大きい。これは電極より注入された電子は，低温領域では相対的に熱散乱される確率が少く，その移動が容易で長い距離を走り，トラップされるまで衝突電離を起し，電子なだれを形成するためと考えられる。

本実験において得られた形成遅れ時間は非常に小さく，多くの場合，パルス

の立ち上り時間 1 ns に近い値，もしくはそれ以下であった。したがって，条件を変えて形成遅れ時間の変化を詳細に検討するのは困難が伴う。そのためには，より波高値の高いパルス発生器を用い，より試料厚さの大きな試料に対し，実験を行う必要があると考える。しかし，実験に用いた程度の厚さの高分子フィルムの破壊遅れ時間の最小値が， 1 ns あるいはそれ以下になることを見い出したことは意義あることと考える。

3.4 結 論

本章においては高密度 P E を中心とした高分子フィルムの破壊遅れ時間の特性を，広範囲の温度領域にわたって測定して得られた結果について論じた。その結果と検討から次の結論が要約される。

(1) 高密度 P E においては， 170°K 以下で電極効果があり，Au 電極よりも仕事関数の低い Al 電極の場合の方が統計遅れ時間 t_s は小さく，破壊しやすいことを示している。この温度領域では主に電極から注入される電子を初期電子とする電子なだれ破壊と考える。

他方， 215°K 以下では電極効果が消失し，主に試料内部から放出された電子を初期電子とするいくつかの電子なだれの協力で破壊する。

(2) PET においては，室温では電極効果が存在したものが 373°K ではその効果が消失する。室温では主に電極から注入される電子を初期電子とする電子なだれ破壊， 373°K では試料内部から放出された電子なだれ破壊と考える。

(3) 高密度 P E の 10^{-8} s 時点での破壊電界強度 (F_B) の温度依存性は，室温 (298°K) 以下では $\partial F_B / \partial T \approx 0$ ，それ以上では $\partial F_B / \partial T < 0$ である。

(4) 高密度 P E の形成遅れ時間は 77°K においては 0.5 ns 以下，室温では $6.4 \times 10^6\text{ V/cm}$ において約 1 ns ， 373°K では $4.6 \sim 5.0 \times 10^6\text{ V/cm}$ において約 1 ns

である。PET ではいずれの条件においても 0.5 ns 以下であった。

(5) 得られた形成遅れ時間から，単一電子なだれ破壊と仮定して高密度 PE の移動度を求めると， 77°K においては $0.6 \text{ cm}^2/\text{s} \cdot \text{V}$ 以上， 298°K では $0.12 \text{ cm}^2/\text{s} \cdot \text{V}$ 以上， 373°K では $0.33 \text{ cm}^2/\text{s} \cdot \text{V}$ 以上である。

3.5 文 献

- (1) Von Hippel and G.M.Lee; Phys Rev Vol.59 p.824 (1941)
- (2) I.D.L.Ball; Proc. Instn. Elect. Engrs. Vol.98. ptI p.84 (1951)
- (3) 家田，沢，山内，宮入；電学誌 Vol.91 p.1962 (昭46)
- (4) 犬石，吉田，天川，森内；電学誌 Vol.84 p.129 (昭39)
- (5) W.G.Oakes; Proc. Instn. Elect. Engrs. Vol.95 p.36 (1948)
- (6) A.E.W.Austen and S.Whitehead; Proc. Roy. Soc. Vol.A176 p.33 (1940)
- (7) Von Hippel and R.S.Alger; Phys Rev. Vol.76 p.127 (1949)
- (8) 犬石，吹田；電学誌 Vol.74 p.150 (昭29)
- (9) R.C.Fletcher; Phys. Rev. Vol.76 p.1501 (1949)
- (10) P.Felsenthal; J. Appl. Phys. Vol.37 p.455 (1966)
- (11) Rogowski; Arch. Electrotech. Vol.13 p.153 (1924)
- (12) H.Kawamura, M.Onuki and H.Okura; J. Phys. Soc. Japan Vol.7 p.528 (1952)
- (13) F.Seitz; Phys. Rev. Vol.76 p.1376 (1949)
- (14) R.Cooper, C.H.Rowson and D.B.Watson; Natur Vol.197 p.663 (1963)
- (15) D.R.Lamb; Electvical Conduction Mechanism in Thin Insulating

Film (1967) Methuen and Co. Ltd. London

- (16) A.C.Lilly; J. Appl. Phys. Vol. 41 p. 2007 (1970)
- (17) 田中, 犬石; 電学誌 Vol. 89 p. 693 (昭44)
- (18) 天川, 犬石; 電学誌 Vol. 84 p. 129 (昭39)
- (19) H. Fröhlich; Proc. Roy. Soc. Vol. A188, p. 521 (1947)
- (20) 田中; 電中研技研報告 No. 72084

第 4 章 不平等電界中（針対平板）におけるアルカリハライド 結晶の短時間破壊と破壊前駆光

4 . 1 緒 言

固体絶縁物の絶縁破壊現象の基礎的研究においては，高電界下における固体誘電体での電荷の輸送過程や増倍過程あるいは格子振動との相互作用を，固体物性論的立場に立って理解することにより破壊機構を解明する方法が取られ，成果を収めてきた⁽¹⁾⁽²⁾。しかしこのような破壊強度の理論値やこれを実証する実験室内での破壊値を，実際の電力系統や電気機器にそのまま適用し絶縁設計を行うことは皆無である。これは実用状態で様々な因子が複雑に加わり，その破壊値を下げるためである。電界の歪みによる部分放電の発生が局部破壊を引き起すことが大きな原因で，一度，トリーのような局部破壊が発生すれば電界の集中を増し，その進展を加速する。したがって実用状態での破壊の研究において重要なことの一つは，如何なる過程により部分放電を起させるような電界の歪みが生じるかを知ること，他の一つは電界の集中が存在するとき如何なる過程により局部破壊が発生し，かつ進展するかを知ることである。破壊現象の実用的研究において，針電極がしばしば用いられるのは後者の立場に立って研究を行うことである。電界の歪みを引き起す主因は，空間電荷の形成であるが，他方，トリーの研究において報告されているように⁽³⁾⁽⁴⁾，空間電荷は針先端近傍の極端な電界の集中を緩和する働きもする。

このように，固体誘電体内での空間電荷のふるまい，電界の不整，部分放電局部破壊は密接に関連し，状況により変化する。

本章においては，実用上重要である針対平板電極構成での固体絶縁物の破壊機構を明らかにするため，これまでの破壊の基礎的研究によく用いられてきた

アルカリハライドの KCl, NaCl の単結晶について実験を行なった結果について述べる。前章と同様立ち上り約 1 ns のパルスを印加し、その破壊遅れ時間の測定を行なっている。パルスの立ち上り時間が極めて短い点は、その時間での針電極周辺の空間電荷となる電界緩和の問題をほとんど無視でき、所定の電圧を印加した時点においては、針先端近傍は、静電界的に計算される非常に高い電界にさらされることになる。こうした場合、どのような物理現象が生じるか興味深い。また針対平板電極構成では、平等電界中での実験では得られない電極の極性の違いによる結果の差も期待できる。より実用的な絶縁材料である高分子材料についての針対平板電極構成での実験結果については次章にゆずるが、物理化学的構造が簡単で多くの物理的特性の知れた KCl や NaCl に対する実験は、不平等電界中における固体絶縁物の短時間破壊の機構を知る上で基礎的な助けとなると思われる。

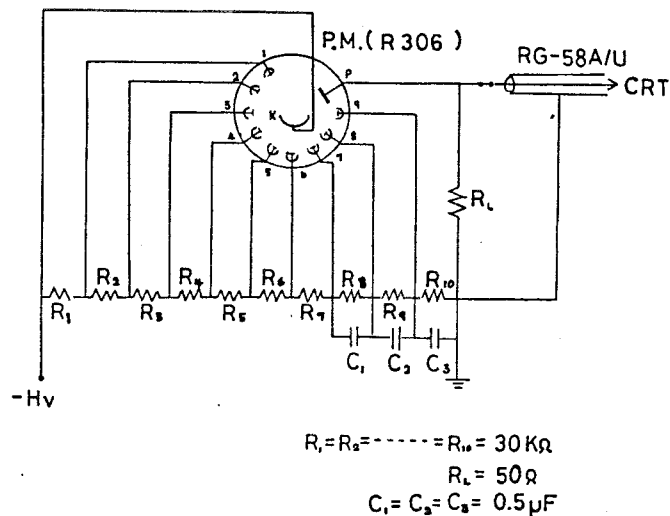
なお実験遂行の過程において、電圧印加と同時に針先端より明瞭な発光領域が対電極に向かって進展することを見い出したので、この破壊前駆光を静止カメラで撮影するとともに、高速の時間分解能を持つ光電子増倍管によりその信号を測定し、発光現象と破壊の関連を明らかにすることに努めた。

4.2 実験方法と試料

試料は KCl と NaCl のほとんど完全と思われる単結晶塊（堀場製作所製）をへき開し、所定の厚さに仕上げ、片面に銀蒸着を施し、導電塗料で黄銅板にはりつけ、他面に針電極（曲率半径 2~3 μm , 鋼製）を特に荷重を加えず立てた。測定はすべて室温（293~298°K）において、シリコン油中で行なった。破壊遅れ時間を測定する場合は（100）軸方向に電圧を印加しているが発光現象を観測する場合は一部（110）,（111）軸方向に電圧を印加した。

パルス発生器は前章で述べたものと同一で、通常、幅 100 ns の繰り返しパルスを用い初発のパルス波形のみ観測しているが、光観測等、特に単一パルスが必要なときは、終端をケーブルの特性インピーダンスで整合して用い、必要に応じパルス整形ケーブルの長さを変えパルス幅を変えた。

用いた光電子増倍管は浜松テレビ社、R306(立ち上がり時間 2 ns)である。信号を同軸ケーブルを通してオシロスコープと歪みなく伝達するために(4・1)図に示されるように陽極負荷抵抗は同軸ケーブル(RG-58A/U)の特性インピーダンス($50\ \Omega$)に合せ整合している。そのため得られる信号は小さくなるが、時間当りの光量は通常検出可能なほど大きい。光量が微小の場合は、超広帯増巾器(日本測器、WBA-L401, 450 MHz)にて増巾した。



(4・1) 図 光電子増倍管とその回路図

4.3 実験結果と検討

[4.3.1] 厚さ効果と極性効果

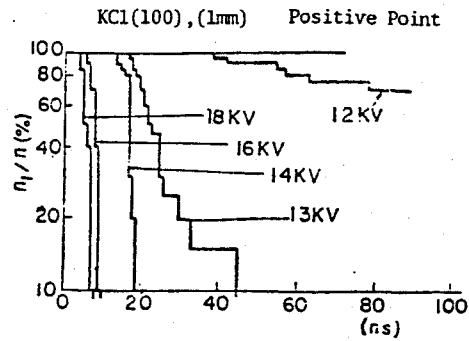
同一条件において20個の試料に対し破壊遅れ時間を測定した結果をラウエプロットにまとめた。KCl(100)に対する針が正極の場合(以下、正針と呼

ぶ)の厚さ 1 mm と 4 mm の結果を (4・2) 図, (4・3) 図 に示し, (4・4) 図 には針が負極の場合 (以下, 負針と呼ぶ) の厚さ 0.3 mm の結果を例として示す。正針と負針とでは試料の厚さが大きくなっているが, これは両者の破壊強度に大きな差があるためで, 正針では (4・3) 図に示されるように厚さ 4 mm の試料が, 印加電圧 26 kV 以上では 100 ns 以内に, 100 % 近く破壊するが, 負針の場合では 0.5 mm の厚さの試料は印加電圧 30 kV においても 100 ns 以内でほとんど破壊しなかった。すなわち顕著な極性効果が存在し, 正針の方が負針の場合よりもはるかに破壊しやすい。

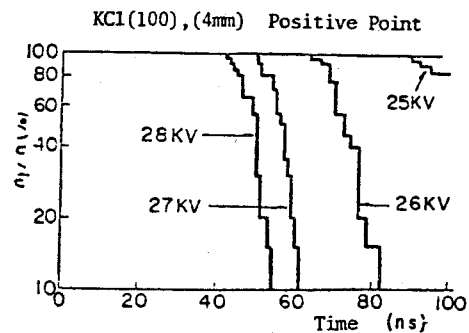
得られたラウエプロットの直線性は良いので, 前章の場合と同様, そのプロットの最小自剰法による近似直線に (3・5) 式を適用する。

(3・5) 式を再記する。

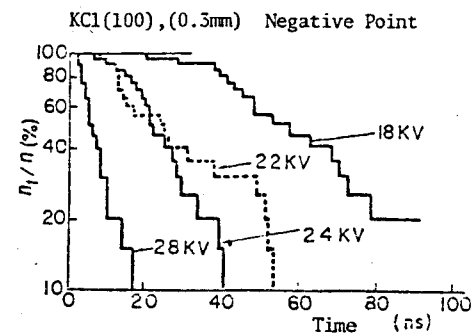
$$n_t/n = \exp\left(-\frac{t-t_F}{t_s}\right) \quad (4・1)$$



(4・2) 図 ラウエプロット 図



(4・3) 図 ラウエプロット 図

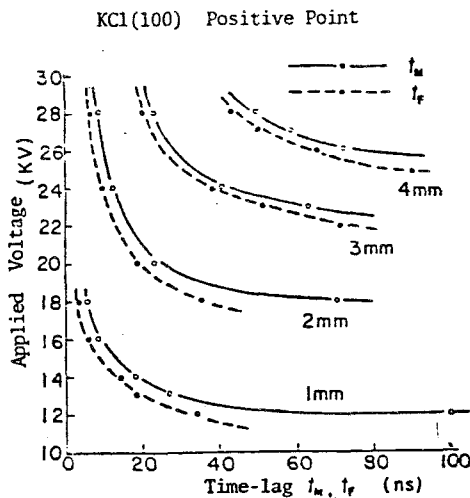


(4・4) 図 ラウエプロット 図

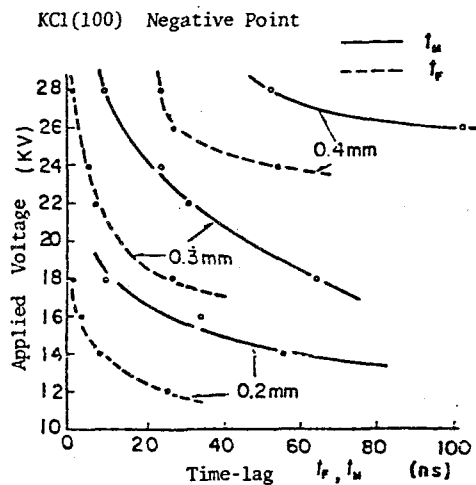
ここで注意すべきことは、上式は実験式であって、単一電子なだれ理論に基づくものでない点である。何故なら、不平等電界中での実験であり、特に正針の場合は針電極から電子は注入されない。したがって、 t_F は単に破壊遅れ時間の最小値を意味するにすぎず、 t_s は破壊遅れ時間のばらつきを示すにすぎない。この点については後に述べる。なお、 t_F と t_s の和は平均の遅れ時間を示すので平均遅れ時間 t_M と称することにする。すなわち、 t_M は次式で表わされる。

$$t_M = t_F + t_s \quad (4.2)$$

前章においては t_F は非常に小さかったので無視し、 t_s を t_M と同じとみなしている。各条件において求められた形成遅れ時間 t_F と平均遅れ時間 t_M の印加電圧に対する関係を (4.5) 図に正針、(4.6) 図に負針について示した。統計遅れ時間 t_s は各条件での差が少く判別が困難であるから示さなかったが、 t_M と t_F の差であるから図から知ることができる。(4.5) 図、(4.6) 図において印加電圧が大きくなるとともに、また試料の厚さが小さくなるとともに t_F , t_s , t_M が小さくなるのは当然の結果であるが、特に正針における t_s は過



(4.5) 図 印加電圧と遅れ時間の関係



(4.6) 図 印加電圧と遅れ時間の関係

電圧の割合が増すにつれて、数 ns と著しく小さくなり、遅れ時間のばらつきが極めて小さくなる。負針においては印加電圧が大きくなっても t_s は t_F よりも小さくなることはなく、また相対的に正針における t_s よりも大きく、遅れ時間のばらつきは大きい。 t_F, t_M については、負針に比べその試料の厚さをはるかに小さいことを考慮すれば、その値は相対的には負針の方が正針よりも大きいといえる。

平均遅れ時間 t_M はその電圧で測定した試料の中で 37% の試料が破壊しない時間を意味するので、ここで (4.5) 図, (4.6) 図から $t_M = 50 \text{ ns}$ となるような電圧を各条件について求めると、得られた値は 50 ns のパルスにおける 63% 破壊電圧を意味する。この電圧値を試料の厚さで割れば、63% 破壊平均電界強度となる。この 63% 破壊平均電界強度と試料厚さとの関係を (4.1) 表にまとめた。

この表より、正針の場合は試料の厚さが増すとともに平均電界強度が下り、厚さ効果が存在するが、負針の場合では平均電界強度は試料厚さにあまり依存せず、厚さ効果はみられない。また、正針の方が負針よりも破壊平均電界強度ははるかに小さい。

極 性	試料厚さ (mm)	63.1%破壊電圧 (kV)	63.1%破壊平均電 界強度 ($\times 10^5 \text{ V/cm}$)
正 針	1	12	1.2
"	2	18.5	0.93
"	3	23.5	0.78
"	4	28	0.70
負 針	0.2	14.5	7.3
"	0.3	19.5	6.5
"	0.4	28.5	7.2

(4.1)表 KCl (100) の 50 ns パルスにおける
63% 破壊平均電界強度と試料厚さとの関係

以上述べたように、正針と負針

との結果には、大きな差があるが、この顕著な極性効果が起る原因について検討してみる。正針の場合、電圧印加と同時に極めて高い電界となる針先端部に向って、その近傍の試料内部から多くの電子がなだれが起り、針先端近くの試料

内部に針と相似の正イオン群が残される。その高電界領域を保った正イオン群の針状先端部に向って更にその近傍の試料内部から多くの電子なだれが起り、高電界を保ったイオン領域が進展する。すなわち気体放電の正ストリーマ⁽⁵⁾⁽⁶⁾破壊と類似の現象が起っているため、破壊しやすいと考えられる。気体放電の場合のような光电離効果については不明であるが、発光を伴う以上正ストリーマ先端近傍における電子なだれの初期電子の供給に寄与していると思われる。負針の場合は、電圧印加と同時に針先端より多数の電子が注入され高電界領域では電離作用が盛んで電子なだれを形成するが、低電界領域では捕獲作用が起りやすくなるとと思われる。また捕獲された電子の空間電荷により電子なだれの先端は広がり、平等電界に近づく傾向を持つ。このため負針は正針に比較して破壊し難い結果が得られたと考えられる。正針の場合、正ストリーマが進展する直接的証拠としては、後に述べるように、破壊電圧より少し低い電圧パルス印加した時、針先端より針状の発光領域が結晶軸に沿って進展する事実を、肉眼あるいは静止カメラにより観測し得る点を挙げる事ができる。

なお、これらの極性効果を顕著にする原因として、針先端部と平板電極部の電界強度の比を考慮する必要がある。針を回転双曲体とみなせば針先端から対平板電極垂線上、距離 x での電界強度は印加電圧 V 、針先端の曲率半径を R とすれば、次のように表わされる⁽⁷⁾。

$$E = 2 VP / \ln q \quad (4.3)$$

$$\text{ただし, } P = d^{1/2} (d+R)^{1/2} / (-x^2 + 2dx + dR) \quad (4.4)$$

$$q = \{ 2d + R + 2d^{1/2} (d+R)^{1/2} \} \quad (4.5)$$

針先端の電界強度 E_1 は上式において $x = 0$ を代入、平板電極での電界強度 E_2 は上式において $x = d$ を代入して得られる。したがって、その比 E_1, E_2 は次のように与えられる。

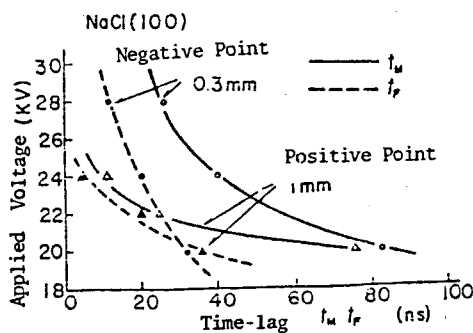
$$E_1/E_2 = (d+R)/R \quad (4.6)$$

$$\approx d/R \quad (d \gg R) \quad (4.7)$$

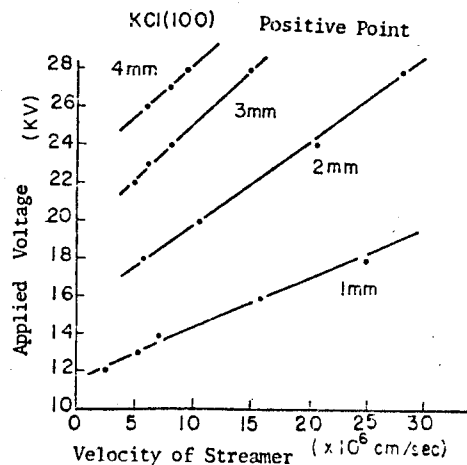
このように電界の不平等性は試料厚さ d によって決定されるため、試料厚さの大きい正針の場合の方が試料厚さの薄い負針の場合より電界の不平等性が強く、元来ある極性効果をより顕著なものとしていると考えられる。

これまで述べてきた $KCl(100)$ の場合と同様、 $NaCl(100)$ についても極性効果は存在する。同一条件において得られたラウエプロットから $KCl(100)$ の場合と同様に t_F, t_M を求めて印加電圧との関係を示したが (4.7) 図である。 $KCl(100)$ の場合の (4.5) 図、(4.6) 図と比較するとその t_F, t_M は、同一条件ではともに $NaCl$ の場合の方が大きく、特に正針においてその差が大きい。(4.7) 図から、50 ns パルスによる 63% 破壊電圧を求めると正針 1 mm の試料において 21 kV となり、 $KCl(100)$ の結果 11.5 kV の 1.9 倍と非常に大きい。負針 0.3 mm の試料では 22.5 kV で KCl の結果の 1.2 倍となる。一般に $NaCl$ は KCl に比較してその破壊電圧は少し高いとされているが、正針において 2 倍近い差があるのは、正ストリーマの進展方向に起因する。

この点については後に述べる。



(4.7) 図 印加電圧と遅れ時間の関係



(4.8) 図 印加電圧と正ストリーマの平均速度の関係

[4・3・2] 正ストリーマの進展

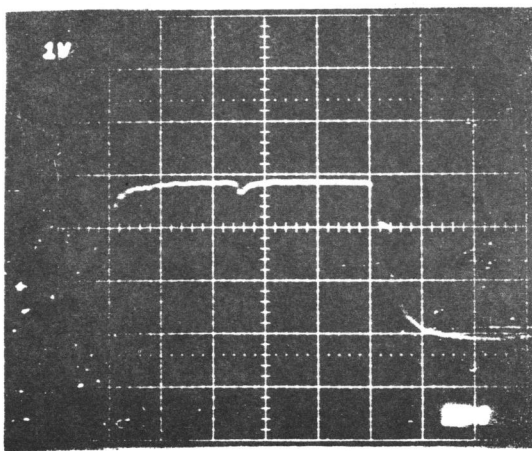
KCl(100)の正針においては、後に静止写真で示すように針先端より対電極に向って垂直に結晶軸(100)に沿って進展する。正ストリーマは電圧印加と同時に針先端から進展を開始し対電極に達した時点で大電流が流れ、破壊が起ると考えられる。したがって正ストリーマの平均進展速度は試料の厚さを破壊遅れ時間で割ると得られる。

$$v_F = d/t_F \quad (4.8)$$

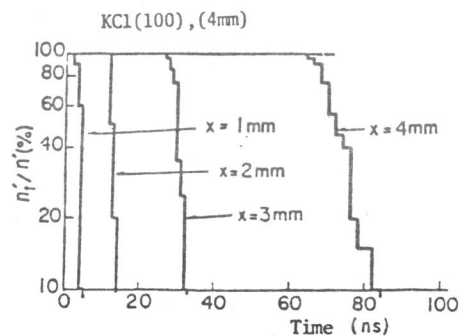
同一条件において破壊遅れ時間にばらつきが生じるようにストリーマの平均進展速度にもばらつきが生じる。(4.8)式における v_F は試料厚さを破壊遅れ時間の最小値である t_F で割った値であるから、同一条件において最も速く正ストリーマが進展する場合の速度である。(4.8)図に v_F と印加電圧の関係を示す。この図より破壊電圧以上では v_F と印加電圧の関係は一次関数にあり、印加電圧の増大とともに v_F も増大する。また試料の厚さが大きくなるととも v_F は減少する。しかしストリーマは結晶内を同一速度で進展しているとは考え難く、あくまで平均の進展速度であることに注意せねばならない。

正針の場合、ストリーマ先端の針状の高電界領域が進展し、対電極に達して導電状態となり、過電流が流れ破壊に至るという考えの一つの証明として、次のような実験を試みた。印加電圧 V において元来100ns以内で十分破壊する厚さ d の試料を2つにへき開して、2個のKCl(100)の間に銀蒸着と微量の導電塗料により薄い金属層をそう入して一つの試料とし、針電極を立てて電圧パルス V を印加する。このとき、ストリーマは針電極から上部試料内を進展し、中間電極層で止る。これはストリーマが中間電極層に達した時点においてその先端が針状でなくなり、下部電極に対しては平等電界となるためである。このとき、上部試料には正ストリーマが進展した跡に沿って、KClがガス化し

たと思れる微小な径を持つ破壊跡を見い出すことができる。また印加パルスの波形にわずかなへこみを見い出すことができる。この波形の一例を(4・9)図に示す。これはストリーマが中間電極に達した時点で上部試料が導電状態となり、下部試料の容量を満す充電電流が流れるためと考える。ここで電圧パルス印加時点から波形のへこみまでの時間を、上述した2層重ねの試料の上部試料内を正ストリーマが進展し、中間電極層に達するまでの時間と考えれば、波形のへこみをオシロスコープで観測することにより、ストリーマ進展の時間的变化を知ることができると考えた。もちろん、中間電極層を入れることにより電界の分布が変わり、上部試料の電界を強めることも考えられるが、針先端およびストリーマ先端の径が十分に小さければ、その先端の電界強度は大きく影響しないと考えられる。実験は2層重ねの上部試料の厚さを $x = 1, 2, 3\text{ mm}$ とし、下部試料の厚さ $d - x = 3, 2, 1\text{ mm}$ として、厚さの和を $d = 4\text{ mm}$ となるようにして行なった。破壊遅れ時間の測定と同様に時間 t までに波形のへこみのなかった試料数 n'_t と全試料数 n の比 n'_t/n と時間との関係をラウエプロットにしてまとめた。



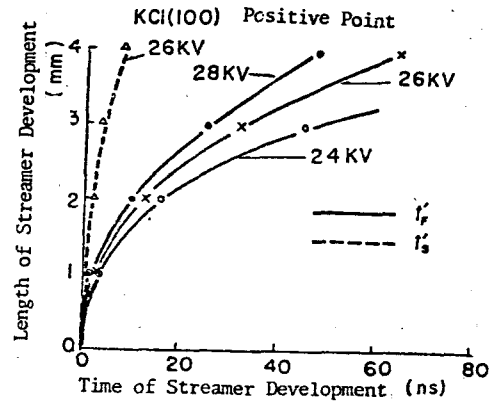
(4・9)図 へこみ波形



(4・10)図 ラウエプロット図

(4・10) 図は印加電圧 26KV の場合のラウエプロットを示している。

$x=4\text{ mm}$ は中間電極層のない厚さ 4 mm の試料の破壊遅れ時間の結果である。これらのラウエプロットから形成遅れ時間に相当する項 t_F' と統計遅れ時間に相当する項 t_s' を求め、ストリーマの進展距離との関係を求めたのが、



(4・11) 図 ラウエプロット図

(4・11) 図 である。この図において

t_s は、ストリーマの進展とともに徐々に大きくなっている。図面には煩雑になるのを避けるため、印加電圧 26KV の一例にとどめたが、他の場合も同様である。このようにストリーマの進展とともに t_s' が大きくなる理由について考えてみる。単一電子なだれ理論に基づく破壊の場合⁽⁸⁾，統計遅れ時間 t_s は (2・20) 式で示され，その物理的意味は破壊に寄与した電子なだれの初期電子の放出の遅れである⁽⁹⁾。(2・20) 式を再記する。

$$t_s = \frac{1}{\nu_0} \cdot \exp \{ N_c / \exp(\alpha L) \} \quad (4・9)$$

正ストリーマの進展による破壊の場合は，小規模な多数の電子なだれが針およびストリーマ先端に向って進み，これが正ストリーマ自身の進展となるのであるから，実験で得た t_s' (あるいは t_s) は正ストリーマの前進に寄与するマイクロな電子なだれの統計遅れ時間が積み重なり生じるとみなされる。したがって t_s' はその進展とともに大きくなると考えられる。

これに対し，同一条件で最も速くストリーマが進展する場合の進展時間 t_F' は (4・11) 図に示されるようにストリーマの進展距離 x のおよそ 2 次関数と

なっている。ストリーマの各時点での進展速度は(4・11)図における t_F' の曲線の接線の勾配で表わされるので、ストリーマの進展速度はその進展とともに減速していることが知れる。この点に関しては写真撮影の結果からも定性的に確かめられている。すなわち、ケーブルの終端を整合し、パルス整形ケーブルの長さを変えて単一パルスの幅を変え、KC1(100)(厚さ1.5 mm)に対し電圧パルス(14kV)を印加し、正ストリーマの進展についての静止写真の撮影を行なった。その結果、10nsの電圧パルスによる正ストリーマの進展距離は100nsの電圧パルスによる進展距離の約2/3、20nsのパルスでは、100nsのパルスのそれとほとんど差がなかった。この事実は、正ストリーマが時間とともに急激に減速していることを示している。

このようにストリーマの進展速度がその進展とともに小さくなる原因は、ストリーマ先端の電界強度(E_{st})の減少によるものであると考える。そこで E_{st} の変化について考えてみる。まず、(4・3)、(4・4)、(4・5)式において、 $d > 10R$ であれば針先端の電界強度は $x = 0$ を代入して次のように近似できる。

$$E = 2V/R \ln(1 + d/R) \quad (4 \cdot 10)$$

同様に正ストリーマ先端の電界強度 E_{st} は次のようになる。

$$E_{st} = 2(V - \Delta V)/r \ln\{1 + 4(d - x)/r\} \quad (4 \cdot 11)$$

ただし $(d - r) > 10r$

ここで、 ΔV はストリーマの進展過程における電位降下で、 r はストリーマ先端の曲率半径である。 ΔV 、 r ともにストリーマの進展距離 x の関数となる可能性を持つ。

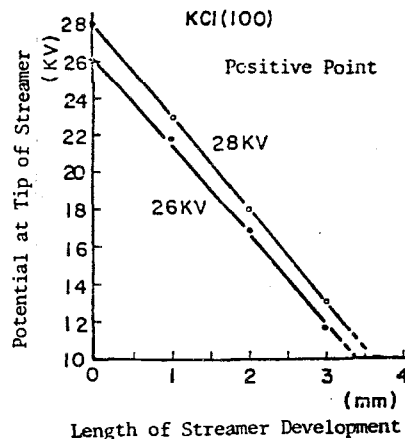
(4・11)式における ΔV について考察してみると。厚さ d の試料に針電極を立て、電圧パルス V を印加してストリーマが距離 x 進んだ状態を考える〔状態(a)〕。このときストリーマ先端の電位は $V - \Delta V$ である。この状態と厚さ $d - x$

の試料に針電極を立て電圧 $V - \Delta V$ を印加した瞬間の状態〔状態(b)〕とが同じ状態であると仮定する。すると(a)の状態ですトリーマが x から更に d まで進展する時間と(b)の状態です針先端からストリーマが対電極に達する時間とが等しくなる。(4・11) 図において厚さ d (4 mm) の試料に電圧パルスを印加して正ストリーマが距離 x 進んだ時点から更に d まで進むのに要する時間 $[t_F' (d-x)]$ を知ることができる。次に(4・5) 図から厚さ $(d-x)$ の試料において、それぞれの形成遅れ時間 t_F' が $t_F' (d-x)$ と等しくなるような電圧を求めれば、この電圧値は $(V - \Delta V)$ となる。このようにしてストリーマ先端の電位変化を求めたのが(4・12) 図である。この図より電位降下はストリーマの進展距離にはば比例している結果を得ることができる。

$$\Delta V = Ax \quad (4 \cdot 12)$$

ここで、 A は定数で約 5 kV/mm である。

A の値が示すように正ストリーマ先端の電位降下は、その進展距離 (mm) 当り、 5 kV であるとおよその見当が得られる。またこの電位降下がストリーマの進展とともに増大することが、 E_{st} を減じる大きな要因であると考えた。(4・11) 式において、 r も変化すると思われるが、静止カメラでとら



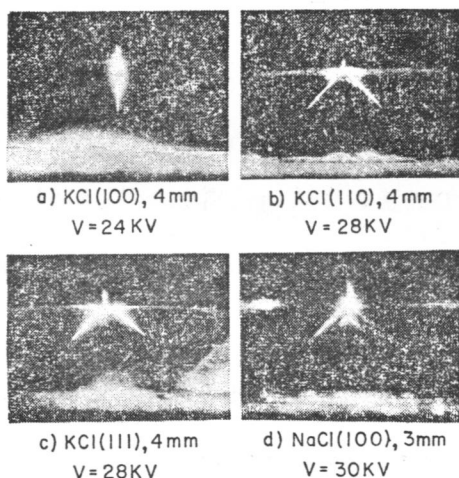
(4・12) 図 ストリーマ先端の電位とその進展距離との関係

えた正ストリーマの静止写真の結果では、その先端は常に十分鋭く、大きく変化することはないと思える。したがって、 x が d に近づくまでは E_{st} の変化は ΔV の変化による影響が最も大きいと思われる。

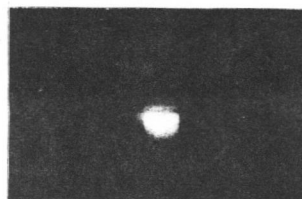
〔4・3・3〕 正ストリーマの進展方向と破壊

正針の場合には破壊電圧により低いパルスを印加すれば、明瞭な青白い発光が結晶軸に沿って進展することはすでに述べたが、ここでは実例を挙げて検討を加える。(4・13)図にその例を挙げている。この写真は試料厚さを大きくして見やすくするため繰り返しパルスを印加しているが、定性的に理解するには十分であると思われる。(4・13)図(a)はKCl(100), 厚さ4 mmの試料に24 kVを印加した場合で、針先端から対電極に向かって垂直にストリーマが進展している。(4・13)図(b)はKCl(110), 厚さ4 mmの試料に28 kVの電圧を印加した場合で、針先端から対電極に向かって2枝に分れて45°の角度をなして、進んでいる。(4・13)図(c)は4 mmの厚さのKCl(111)試料に対し28 kVの電圧を印加した場合で、ストリーマは対電極に向かって3枝に分かれて進んでいる。KClの場合、ストリーマは電圧印加方向にかかわらず(100)の結晶軸に沿って進展することが理解できる。次に(4・13)図(d)はNaCl(100), 厚さ3 mmの試料に電圧パルス30 kVを加えた場合であるが、KClの場合と異なり、針先端から(110)軸, (111)軸に沿って、多枝に分かれて対電極に向かって進んでいる。このようにKCl・NaClの正ストリーマの進展の仕方は大きく異なっているが、何故、物理化学的性質の類似した両物質の間で、このような差がみられるかについては、現段階では、明確に説明することはできない。しかし、何んらかの物理的原因に基づく両物質の正ストリーマ進展方向の差が、正針における両者の破壊電圧に大きな差を与えていると思われる。すなわち、正針の場合においては正ストリーマが対電極に達して試料が導電状態となった時点で破壊が起るので、破壊に要する時間あるいは破壊電圧はストリーマの進展距離に直接左右される。KCl(100)の場合、ストリーマは対電極に対し垂直に走る所以その進展距離は試料の厚さに等しい。他方、NaCl(100)の場合

は(110)軸,あるいは(111)軸に沿って進むことが多いので,その進展距離は試料の厚さの $\sqrt{2}\sim\sqrt{3}$ 倍となる。この事実により正針の場合NaClの方がKClよりもはるかに破壊電圧が高くなっていると考えられる。KClのみについても,(100)軸方向では厚さ4mmの試料が印加電圧26~28KVにおいて100%,100ns以内で破壊する事実を得ているのに対し,(110)軸あるいは(111)軸方向では(4・13)図(b),(c)において示されているように28KVの印加電圧でも破壊しない。これは正ストリーマの進展距離の差に基づくことは明白である。



(4・13)図 ストリーマ進展状況(正針)



(4・14)図 ストリーマ進展状況(負針)

負針の場合も同様に発光の観測を行うと,単一パルスの場合は針先端近傍の微小な領域が発光しているにすぎない。繰り返しパルスの場合は(4・14)図に示されるように針先端より発光領域が雲状に広がっているのが観測される。単一パルスと繰り返しパルスによる差は,後者の場合,前者より印加電圧を2倍にし得る点およびパルスの繰り返しによる加算の効果が考えられる。(4・14)図はKCl(100)の場合の例であるが,NaClの場合も同様である。負針の場合は結晶軸に沿って発光が生じることはなく,KClとNaClの差もみられな

いことが、正針に比較して両者の破壊電圧の差が少ない原因の一つと考えられる。

以上のように本実験条件においては、KCl と NaCl には負針の場合、写真観測の結果にも大きな差もみられず、破壊電圧も後者の方がわずかに大きいにとどまるのに対し、正針の場合では、その物理的理由は明らかでないが正ストリーマの進展の仕方に大きな差がみられ、この事実が NaCl (100) の破壊電圧が KCl (100) のそれよりもはるかに高くなる結果を導いていることが明らかとなった。ところで、平等電界中におけるインパルス破壊の実験において Cooper らは⁽¹⁰⁾ NaCl には結晶軸方向に対する破壊電圧に差がみられないのに対し、KCl では(100)軸方向のみ破壊電圧が低く、他の軸方向では NaCl と差がみられないとの結果を得ている。一般には NaCl は KCl よりもその破壊強度は高いとされているが⁽²⁾、この原因は通常の実験は両者とも(100)軸方向で行なわれることが多いためである可能性もある。また、NaCl (100) の平等電界中での実験において、Inge は⁽¹¹⁾ その破壊路は陽極から、(110)軸方向に伸び、ときには枝分れして(111)軸方向に進み、陰極に達するとの事実を見い出している。この場合、陽極に何らかの原因で集中電界が生じ、正ストリーマが進展したと考えられる。本実験の正針の場合のように、陽極側に集中電界を与えれば、その破壊電圧が著しく低下する事実から考え、平等電界においても、電子なだれによる空間電荷の形成のため、あるいは陽極側の試料の凹凸から集中電界が生じ、正ストリーマとして発展する可能性は十分あると考えられ、その実験には細心の注意を要すると考えられる。

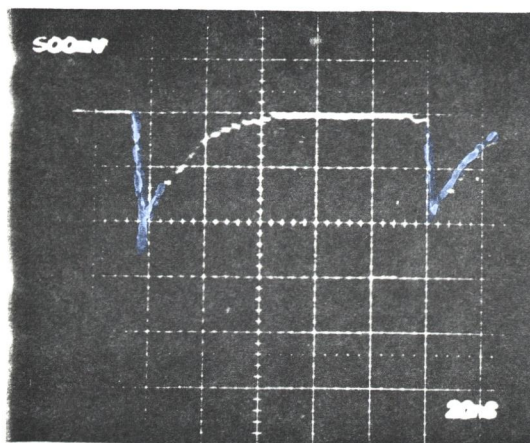
[4・3・4] 光電子増倍管による破壊前駆光の測定

正針の場合において得られた光電子増倍管による光信号波形の例を(4・15)図に示す。信号は電圧印加と同時に急激に増大し、ただちに減衰を開始する。

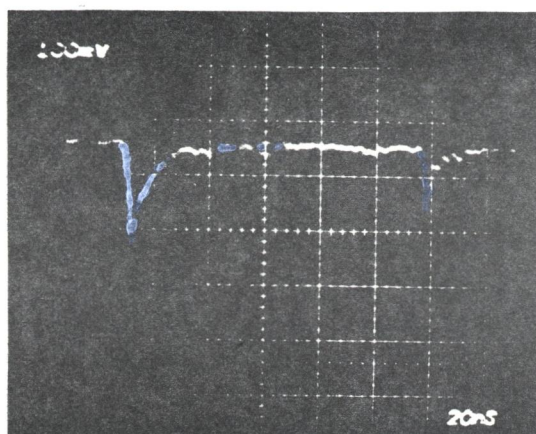
減衰の度合は条件によって異なるが、KCl (100) 厚さ 1.5 mm に対し印加電圧 1.3 kV を加えた場合は 50~60 ns で減衰を完了する。しかる後、パルス巾 100 ns の場合は電圧印加後 100 ns の時点、すなわち電圧パルスが消去される時点において再び信号は急激な増大を示し、再び減衰する。初めの光パルス信号は正ストリーマの進展にともなうもので、電圧が印加された瞬間、きわめて高い電界となる針先端部に向ってその近傍から多数の電子なだれ群が生じ、激しい衝突電離にもとづく発光が起る。そのことにより正ストリーマは高速で進展するが、その先端の電界強度はその進展とともに弱る。したがって時間とともに正ストリーマ先端近傍で衝突電離現象の度合いは低下し、発光量も低下する。そして正ストリーマの進展速度も低下し、ついにはその進展を停止する。しかし正ストリーマが進展してきた領域には電子に比較して移動し難い正の空間電荷が残されており、印加電圧が消去された時点において自己の空間電荷による電界のため、沿面放電などでみられる、いわゆるバックディスチャージ⁽¹²⁾を引き起し、発光が生じる。

負針においても、その信号量は小さいが光信号を得ることができる。(4・16) 図にその例を示す。電圧印加と同時に信号のピークがみられ、その後減衰し、かつ電圧消去時点でバックディスチャージがみられる点は正針の場合と同様である。

ここで、電圧印加から 100 ns 時点まで、すなわち電圧印加中での光信号の総和(面積)を光量と定義して、各条件での結果の比較を行う。(4・17) 図には正針および負針において KCl (100) 厚さ 1.5 mm の試料に対して得られた光量と印加電圧の関係を示す。各条件における実験試料数は 9~10 個である。図には最大値、最小値および平均値を示している。正針においても負針においても光量の平均値は図において近似的に直線関係となっている。光量は対数目



(4・15) 図 光電子増倍管による信号波形
(正針)

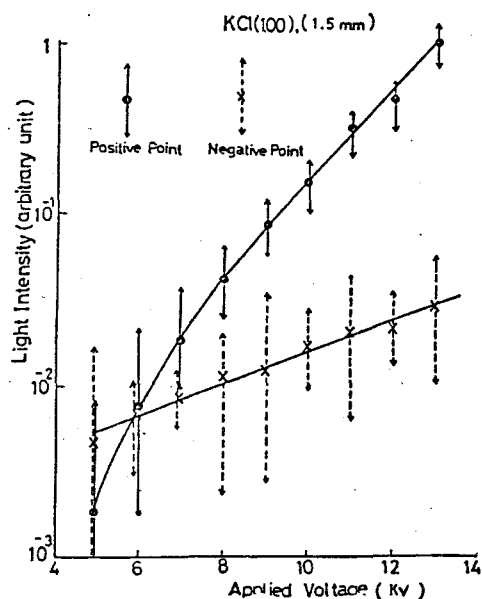


(4・16) 図 光電子増倍管による信号波形
(負針)

盛で示しているから、正針，負針ともに光量は印加電圧に対し指数関数的関係にある。ただし，正針の方が負針の場合に比べ光量の印加電圧に対する依存度がはるかに高く，光量も印加電圧の高い領域では桁違いに大きい。この事実は破壊現象において顕著な極性効果が得られた事実と直接の関係があると思われる。

正針の場合において特にその光量が印加電圧の増大とともに指数関数的に増大する事実を定量的に説明することは難しいが，定性的な理解を試みる。正ストリーマの進展は針先端あるいはストリーマ自身の先端に向う電子なだれ群の生成の難易に支配される。初期の針先端の電界強度は(4・10)式で与えられるから，印加電圧 V に比例し，その増大とともに針先端およびその近傍の電界も増大する。そのことにより電子なだれの初期電子となる電子の放出量もPoole-Frenkel 効果⁽¹³⁾により指数関数的に増大し，電離係数 α も増大すると考えられるから衝突電離数も飛躍的に増加する。正針の場合は初期の針先端の高電界を正ストリーマ先端に移行しつつも，かなり高く保持し得る機構であるから，正ストリーマの進展が容易な印加電圧では，発光量の総和はきわめて高いものとなる。

これに対して負針の場合は、針先端より注入された電子を初期電子とする電子なだれ群が進展するが、その先端は広がり傾向を持ち平等電界に近づく傾向があるため、初期の高い電界強度を維持しえなくなる。このような機構のため正針の場合ほど発光は大きくならない。いずれにしろ発光現象は電子なだれのような衝突電離作用に基づくものであるから、破壊現象と密接に関連を持つといえる。



(4.17) 図 印加電圧と光量の関係

ここでバックディスチャージによ

る光量の結果について簡単に述べる。正針の場合では、電圧印加時での光量に対するバックディスチャージによる光量の割合は小さく、高々5割である。負針の場合は、印加電圧が高ければ(13KV)その比率は高く8割に達する。しかし印加電圧の低下とともにその比率は低下する傾向にあり、時にはバックディスチャージによる信号が認めえないものもある。いずれの極性においても、電圧印加時での光量に比較して同一条件において得られるその光量は試料によりそのばらつきが大きい。

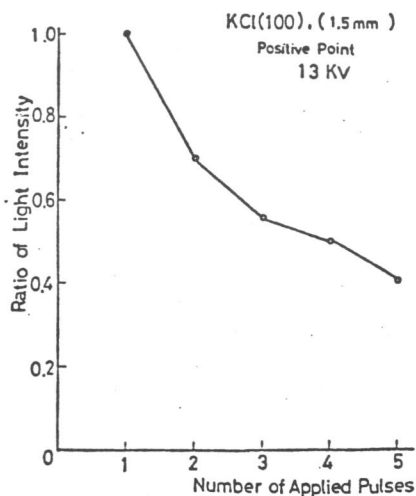
次に、同一波高値の単一パルスをおる一定の時間で繰り返し印加した場合、光量がどのように変化するかを測定した。

(4.18) 図には正針において13 kvの電圧パルスを15秒間隔で印加した時の実験結果を示す。各プロットは初発の電圧の電圧パルスによる光量に対してのそれぞれの印加回数の電圧パルスによる光量の比を、実験を行

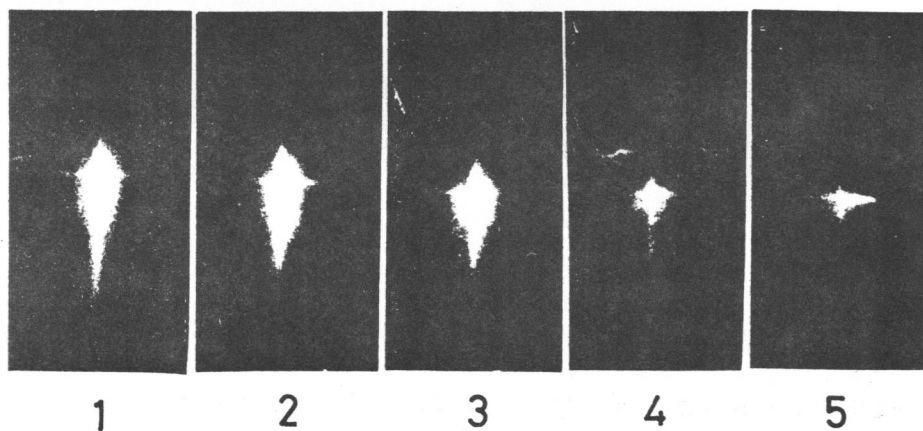
なった10個の試料〔KCl (100) 厚さ1.5 mm〕のそれぞれについて求め、その比の平均値で示している。光量比は明らかに電圧パルスの印加回数が増えるとともに減衰している。これは先に加えられた電圧パルスによる正ストリーマの進展により形成された正の空間電荷が、電圧パルス消去時点でのバックディスチャージによっても完全に中和しえず、15秒後においてかなり残存し、後に加えられた電圧パルスによる正ストリーマの進展をより困難なものとしている。また残存する正の空間電荷の量は電圧パルスの印加回数とともにその蓄積量を増していることも示している。この現象を静止カメラを用いて撮影した結果が(4・19)図である。正ストリーマの進展距離は電圧パルスの印加回数の増加とともに減少しており、光電子増倍管による光信号の結果と対応している。

ここで注意すべき点は単一パルスを得るためにケーブルの終端は整合され針電極と平板電極は52Ωの抵抗により結合されているため、針電極と平板電極間の電荷の移動は容易であると思える点である。にもかかわらず、実験結果は電圧パルス消去後15秒においても正ストリーマの進展に影響を与えるに十分な量の空間電荷が残されていることを示している。これは正ストリーマが試料内奥深く進展しているため残された正の空間電荷の存在する領域へ、電極などからの電子が拡散し中和するのに時間を要するためと考える。このように考えるならば、印加する電圧パルスの時間間隔を十分大きくすれば初めの電圧パルスによって形成された正の空間電荷は電子と再結合し、試料はもとの状態に戻り、次の電圧パルスを加えた時、光量に変化が生じなくなると思われる。この点を実験点に確かめた結果を示したのが(4・20)図である。初発の電圧パルスによる光量に対する第2発目の高電圧パルスによる光量の比の平均値(試料数10個)を、両電圧パルスの時間間隔を変え求めている。この実験は発光量に対する、いわばプリストレスのレスト時間効果の実験というべきものであり、

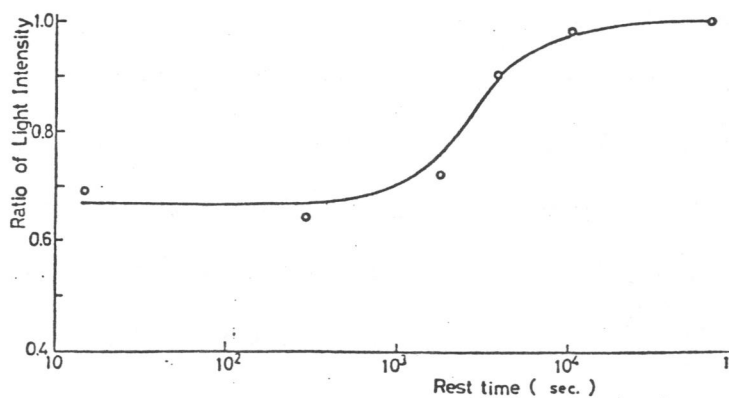
プリストレスの効果が時間とともに消失して行く傾向を示している。実験結果は20時間後には、光量比はほぼ1となっていることを示し、この時点では試料はほぼもとの状態に戻っているとし得る。実験は空間電荷の中和の度合いを直接測定したものでないが、少くとも、電圧パルスを繰り返し加えた場合の変化は、初めに加えられ



(4.18) 図 電圧パルス印加回数と光量



(4.19) 図 電圧パルス印加回数とストリーマ進展状況



(4.20) 図

光量における
レスト時間効果

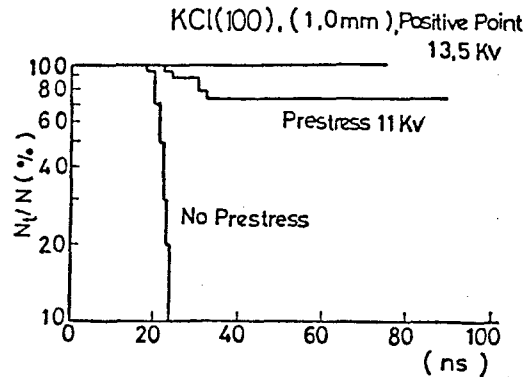
た電圧パルスにより試料が何んらかの永久的な物理的变化を与えられたためではなく、時間とともに回復する物理的效果によるものであると断定しうる。この点は正の空間電荷の形成によるものと考えられるのが妥当であると思われる。

以上、述べてきた光量に対するプリストレス効果は、一般の絶縁破壊の研究における実験でしばしば認められる⁽¹⁴⁾プリストレス効果と対応づけうる。KCI (100) 厚さ 1 mm の試料に対し、11 kV の単一パルスを印加してから 15 秒後に 13.5 kV の電圧パルスを加えた時の破壊遅れ時間の結果と、何んらかのプリストレスを加えずに 13.5 kV の電圧パルスを加えた時の破壊遅れ時間の結果をそれぞれのラウエプロットで比較したのが (4・21) 図である。なお 11 kV の電圧パルスを加えた場合、実験を行なったすべての試料の (20 個) は破壊が生じなかった。破壊遅れ時間の最小値 (形成遅れ時間) には両者に大きな差はないものの、破壊遅れ時間の分布には大きな差がある。プリストレスのない場合は、破壊遅れ時間はすべて 18~25 ns の範囲内で破壊しているのに対し、プリストレスのある場合は 100 ns 時点でも 75 % の試料が破壊に至っていない。したがってプリストレスを加えた場合の方がはるかに破壊が生じ難くなっている。これは、光量に対するプリストレス効果と同様、11 kV の電圧パルスが印加され正ストリーマが進展した後、残された正の空間電荷が 13.5 kV の電圧パルスを加えた時の正ストリーマの進展を、プリストレスを加えない場合に比較して、より困難なものとしているからである。

何故、正の空間電荷が残されていると正ストリーマの進展が阻害されるかについて考えてみる。一つの見方は、正ストリーマが進展すべき領域に正の空間電荷が存在すると、正ストリーマ先端の実効の電界強度が緩和されると考える点である。別の見方をすれば、正ストリーマはその先端近傍に放出された初期電子による電子なだれ群の生成により進展するものであるから、進展すべき

領域に正の空間電荷が存在することは初期電子として放出されるべき電子数が少ない状態にあると考え得るので、相対的に正ストリーマの進展が困難なものとなると考えられる。

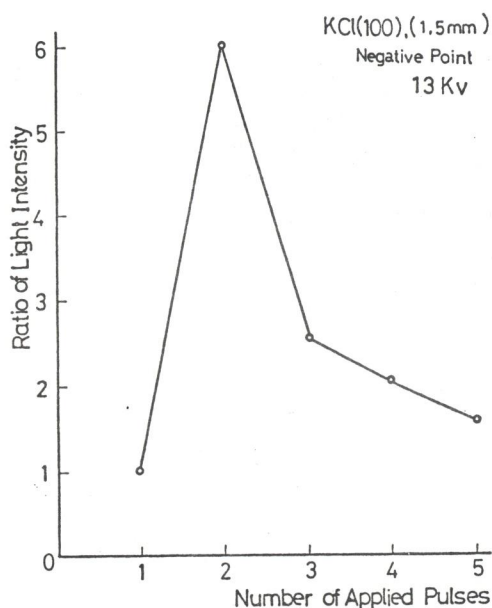
次に負針において同一電圧パルスを繰り返し印加した時、光量がどのように変化するかを示した結果が(4・22)



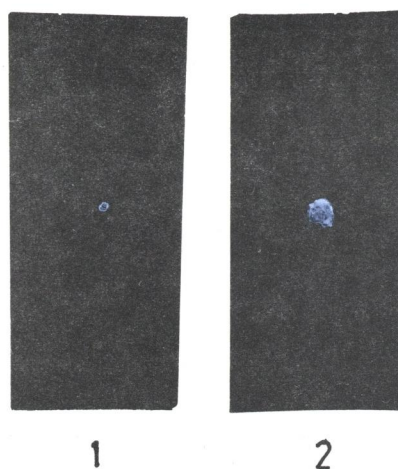
(4・21) 図ラウエプロット図
(プリストレス効果)

図である。正針の場合と同様、厚さ 1.5 mm の試料に 15 秒間隔で 13 kV の電圧パルスを加えているが、その結果は全く異なる。光量の絶対量が正針に比べ非常に小さい点はすでに述べた通りであるが、問題は光量の変化の仕方である。初発の電圧パルスによる光量に対する 2 発目の電圧パルスによる光量の比は約 6 であり、2 発目の場合の方がその光量ははるかに大きい。3 発目以後は徐々に光量比は減少し、5 発目では 1.6 であった。この結果は正針の場合に電圧パルスの印加回数の増加とともに光量が単調に減少する結果と全く異なる。

この結果を理解することは、正針の場合ほど簡単ではないが、若干の検討を加えてみる。初発の電圧パルスを加えられた時、針先端から注入された初期電子とする多数の電子なだれ群が進展を開始する。電圧が消去される直前では針先端から試料内へある深さまで電子なだれが進展し、電子なだれ群の先端領域では多数の電子が存在しているのに対し、その領域と針電極の間では電子よりも正の空間電荷が多く存在すると思われる。これらの電荷の大部分は電圧が消去された時点でバックディスチャージにより中和されるが、完全でなく、やはり針先端からある深さまでは正の空間電荷が多く存在する領域があり、またその奥には電子が多く存在する領域があると思われる。このような状態にある試



(4.22) 図 電圧パルス印加回数と光量



(4.23) 図 電圧パルス印加と発光

料に対し、再び針側に負の電圧が加えられたならば、注入された電子と正の空間電荷との再結合、あるいは実効の電界が高まるため電離現象が活発になることにより光量が増大すると考えた。3発目以後の結果は、初発の電圧パルスにより形成された正の空間電荷の存在する領域もしくはその量が、2発目以後の電圧パルスの印加に中和されることにより減少するためと考えた。この現象を静止写真で撮影したのが(4.23)図である。2発目の場合は写真においても発光が認められるが、他の場合はほとんど認め難い。しかし、正針の場合に比べれば発光の領域も小さく、かすかなものである。

上で述べたような2発目の電圧パルスによる光量が非常に高くなるという実験結果から考えれば、破壊現象においても初発の電圧パルスよりも2発目の電圧パルスの方が破壊を生じさせやすいとの推察も成立する。他方、正針の結果におけるように一般的には、同極性のプリストレスは破壊電圧を上げる⁽¹⁴⁾ことが知られている。負針の場合プリストレスがいかに作用するか興味深い点であると思われたが、実験を行なった範囲内では、破壊しやすくなる傾向も、破壊

し難くなる傾向も、いずれも見い出すことはできなかった。これは初発の電圧パルスが印加されることにより、正負両電荷の存在する領域が試料内に生じるが、試料全体からみれば形成される電荷量は小さいものとなるためかも知れない。

4.4 結 論

本章においては針対平板電極構成のもとでKCl(100)とNaCl(100)の破壊遅れ時間の測定結果とKCl(100)の破壊前駆光を光電子増倍管により測定した結果について論じられた。得られた結果とその検討を要約すると次のようになる。

(1) KCl(100)とNaCl(100)においてはともに、正針と負針の間で顕著な極性効果があり、正針の方が負針の場合よりはるかに破壊しやすい。破壊遅れ時間の特性は、相対的に負針の方が正針の場合よりも大きくなる。正針の場合は気体放電の正ストリーマ破壊と類似の機構で放電路先端の電界強度を高く維持して進展することによりその破壊値を低下させる。負針の場合は、針先端からの電子なだれ群が広がり傾向をみせ平等電界に近づくため、正針の場合ほど破壊電圧は低くならない。

(2) KCl(100)の平均破壊電界強度は正針の場合、厚さ効果があり、負針においては存在しない。

(3) 正ストリーマの進展に際しては、明瞭な発光をともしう。KClの場合は電圧印加方向に関係なく(100)軸に沿って進展し、NaClの場合は(110)軸あるいは(111)軸方向に枝分かれして進展する。両者のこのような正ストリーマ進展の仕方の差が何故生じるかを物理的に説明することはできないが、NaCl(100)の破壊電圧は正針の場合KCl(100)のそれに比べはるかに高く

なるとの結果は、その差、すなわち正ストリーマの進展距離がNaCl (100) の場合KCl (100) のそれと比べ長くなるという事実によって主に導かれる。

(4) 正ストリーマの進展速度はその進展とともに急激に低下する。同一条件における破壊遅れ時間のばらつきは、正ストリーマの進展過程においての速度の変化の仕方に差が生じることによる。

(5) KCl (100) において破壊電圧よりも低い電圧パルスを印加した時、正針の場合では電圧印加と同時に進展する正ストリーマによる光パルスと、電圧消去時におけるバックディスチャージによる光パルスが生じる。負針の場合においても、電圧印加時の電子なだれによる光パルスと電圧消去時のバックディスチャージによる光パルスが生じる。

光量においても顕著な極性効果がみられ、印加電圧が高ければ正針の方が負針におけるよりもその光量ははるかに大きく、印加電圧に対する依存性もはるかに大きい。

(6) 正針の場合、同一波高値の電圧パルスを繰り返し印加すると、得られる光量は減少し、いわば光量に対するプリストレス効果が存在する。この効果は電圧パルスの印加時間間隔を大きくすることによって減少し、光量に対するレスト時間効果が存在する。光量に対するプリストレス効果は前課電の電圧パルスによる正ストリーマの進展の後、正の空間電荷が残され、それが次の電圧パルスによる正ストリーマの進展を阻害していると考えられる。同様な理由により、プリストレスは破壊現象にも影響し、破壊遅れ時間を増大させ、破壊をより困難なものとする。

(7) 負針の場合は電圧パルスを繰り返し印加した時、2発目の電圧パルスによる光量が非常に大きくなるが、破壊現象との関連はみられない。

4.5 文 献

- (1) S.Whitehead; Dielectric Breakdown of Solids (1951)
Clarendon Press, Oxford
- (2) J.J, O' Dwyer; The Theory of Dielectric Breakdown of Solids (1964) Clarendon Press, Oxford
- (3) 縄田, 河村, 家田; 電気学会論文誌 Vol, 96-A p.433 (昭51)
- (4) 吉村, 太田, 佐竹, 能登; 電気学会論文誌 Vol.96-A p.433 (昭51)
- (5) G.G Hudson and L.B.Loed; Phys, Rev, Vol.123 p.29 (1961)
- (6) Von, Engel; Ionized Gases (1965) Clarendon Press Oxford
- (7) J.H.Mason; Proc.Instn Elect, Engrs, Vol. 98 p. 44 (1951)
- (8) F.Seitz; Phys, Rev. Vol.76 p.1376 (1949)
- (9) 犬石, 吹田; 電気学会雑誌 Vol.74 p.150 (昭29)
- (10) R.Cooper, D.J.Grossort and A.A.Wallace; Proc.Phys.Soc.B
Vol.76 p.169 (1957)
- (11) L.Inge and A Walther; Z,Phys. Vol.71 p.9 (1931)
- (12) 横井, 鈴木; 電気学会雑誌 Vol.87 p.568 (昭42)
- (13) D.R.Lamb; Electrical Conduction Mechanisms in Thin Insulating Films (1967) Mathuen and Co.Ltd. London
- (14) A.Bradwell, R.Cooper and B. Varlow; Proc.Instn, Elect, Engrs.
Vol.118 p.247 (1971)

第 5 章 不平等電界中（針対平板）における高分子絶縁物の 短時間破壊

5.1 緒 言

前章においては固体絶縁体の針対平板電極構成のもとでの短時間破壊機構を明らかにするために、物理化学的構造が簡単で多くの物理的特性の知れた KCl と NaCl の単結晶を用いて実験した結果について報告した。得られた知見のなかで特に興味深い点は、顕著な極性効果が存在し、正針の場合はその発光の状況から判断して、気体放電の正ストリーマ破壊⁽¹⁾⁽²⁾と類似の機構によりその破壊値が著しく低下することである。同様なことが液体誘電体である n-ヘキサンやシリコン油⁽³⁾⁽⁴⁾でも見い出された。類推すれば、実用的に極めて重要な絶縁材料である固体有機高分子においても類似の現象が起る可能性が強いと思われる。本章はこのような観点から、代表的な 5 種類の高分子絶縁物に対し、針対平板の電極構成のもとで、前章と同様に立ち上り 1 ns のパルスを印加し、その破壊遅れを測定する方法を用いた。高分子絶縁物に対して針電極を用いた破壊の研究は、一般にはトリッキング破壊のような比較的長時間を要する破壊の研究が^{(5)–(9)}多く、一発のパルスで破壊を完了させるような実験は少い。トリッキングの研究においては静電的には極めて高電界となる針先端近傍の領域は、空間電荷の形成により緩和されることが報告されている。⁽⁸⁾⁽⁹⁾

本実験の場合、パルスの立ち上り時間が非常に短いので電圧が印加された瞬間においては、針先端は高分子材料の本質的破壊強度とされている値⁽¹⁰⁾の一桁近く高い電界強度にさらされることとなり、激しい電離現象が起ると予想される。

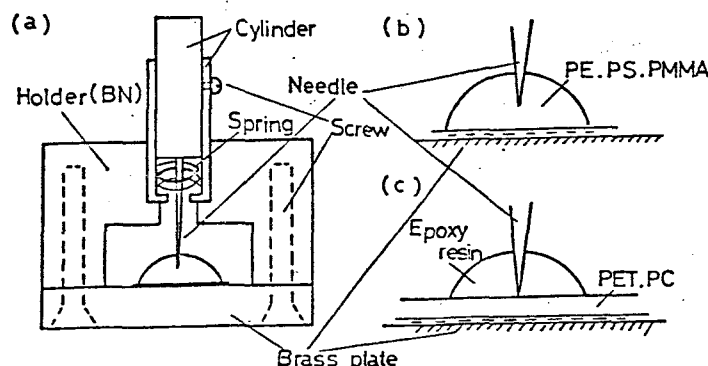
5.2 試料と実験方法

実験に用いた高分子材料はポリカーボネイト (PC), ポリエチレンテレフタレート (PET), 低密度ポリエチレン (PE), ポリスチレン (PS) およびポリメチルメタクリレート (PMMA) である。PC と PET は市販のフィルム (PC, バイエル社, マクロホール N または E), (PET; 東レ社, ルミナー) を用いその片面を銀蒸着し, 銀ペーストにより平板電極に固定する。しかる後, 顕微鏡にて注意深く観測しつつ針電極を取り付けたシリンドーを徐々に前進させ, フィルム面の反射像を利用して針電極の先端とフィルム面との間隔を零に保ち小ねじにて固定する。その後針電極先端周辺をアラルダイトでモールドする [(5.1) 図(a) を参照]。PE については針電極を一度, 平板電極との間隔を零になるまで近づけ, その後ばねの力を利用して逆にスライドさせ, マイクロメータヘッド (精度 $\pm 1 \mu\text{m}$) により所定の電極間隔を保ち小ねじにて固定する。この様にしてセットされた電極間周辺に PE の小片を置き, 真空中にて基板を加熱し (基板温度約 160°C , 時間約 3 時間) 融解させて後除冷して試料とする。加熱時においてシリンドー (真ちゅう), 針 (鋼), ホルダー等の熱膨張係数の差により電極間隔のずれが生じないようにホルダーとして熱膨張係数の小さなボロナイト (BN, 電気化学社) を用いている [(5.1) 図(b) 参照]。PMMA は精製モノマーに微量の重合開始剤 (アゾビスイソブチロニトリル: AIBN) を加え, パイレックス管中にて 80°C , 10 分間予備重合を行う。粘稠になった液体を, PE の場合と同様な方法でセットされた電極間に滴下し, N_2 ガス中にて約 15 時間, 80°C にて加熱重合し試料とする。PS の場合も PMMA と類似の方法である。

針電極は市販の木綿針を電解研磨によりその先端の曲率半径を $1 \mu\text{m}$ 以下に保った。平板電極は磷青銅板をハイプロポリシャー (マルトー社) にて最終的に

は $0.05\mu\text{m}$ の研磨粒子を用い、鏡面仕上げにした。

実験方法は上で述べた方法で作成された試料に対し、第3章、第4章と同様立ち上り約 1ns の電圧パルス印加し、 100ns の範囲内において破壊遅れ時間を測定する方法である。

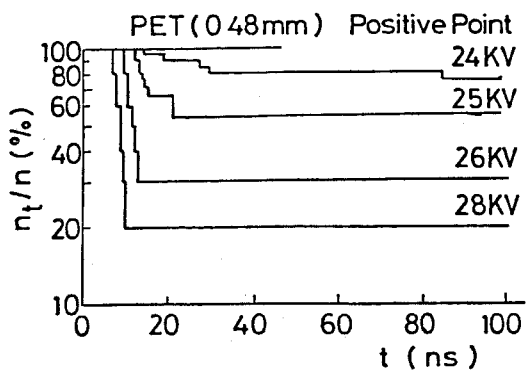


(5.1) 図 電極構成

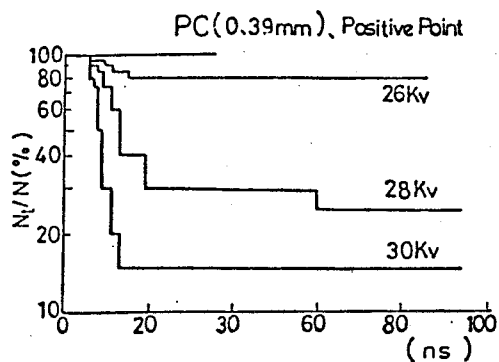
5.3 実験結果と検討

[5.3.1] 50%破壊電圧

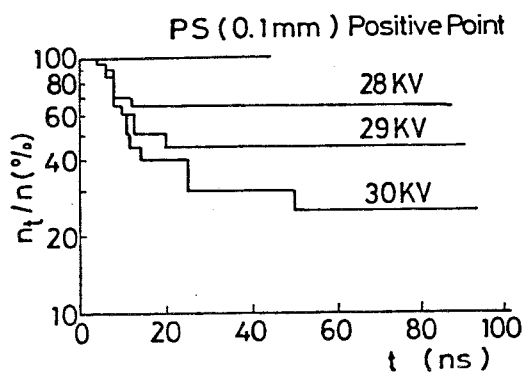
得られたラウエプロットの例を(5.2)図～(5.7)図に示す。(5.2)(5.3)(5.4)図は正針におけるそれぞれPET,PC,PSの結果の例である。(5.5),(5.6),(5.7)図には負針の場合の例として、それぞれPMMA,PE,PSの結果を示している。(5.7)図に示した負針におけるPSのラウエプロットの直線性が良かった以外は、いずれもそのラウエプロットの直線性は良くない。時間経過の少い時点までの直線性は良いものの、ある時間経過後、急激にその直線性は失われ、プロットの勾配はゆるやかなものとなる。例に示していない、正針でのPE,PMMA,負針でのPET,PCについても同様な傾向がみられる。ラウエプロットが直線性を保つことは、破壊確率が時間に対して一定であることを意味する。したがって、得られた結果の多くは、ある時間



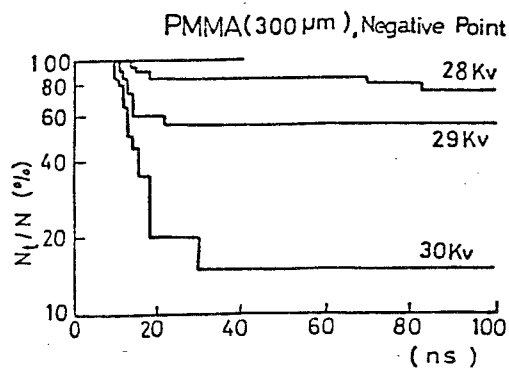
(5.2) 図 ラウエプロット図



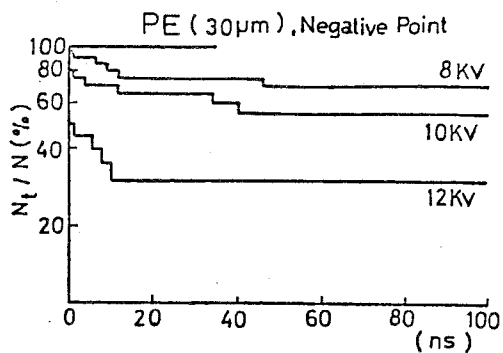
(5.3) 図 ラウエプロット図



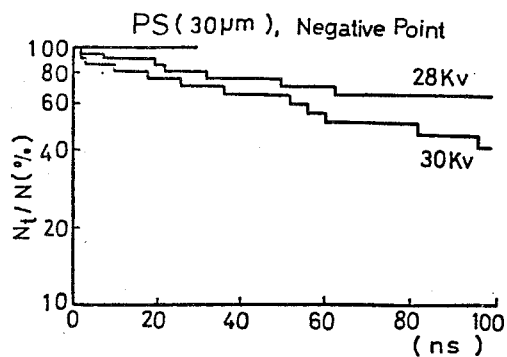
(5.4) 図 ラウエプロット図



(5.5) 図 ラウエプロット図



(5.6) 図 ラウエプロット図



(5.7) 図 ラウエプロット図

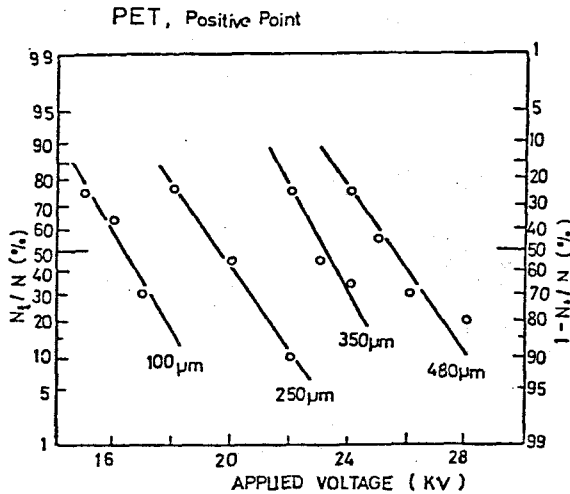
経過後、時間に対する破壊確率が低下することを意味する。この事実は、電圧を印加することにより、時間とともに試料内の状態が変化することを示している。この点については後に述べる。いずれにしろ、ラウエプロットが直線とならなければ、前章に示した実験式(4・1)式が成立しない。よってその近似直線から統計遅れ時間を求めることはできない。ただし、形成遅れ時間については、時間経過の少い時点までラウエプロットの直線性は良いので、単なる最小の遅れ時間という意味において求め得る。

ここでは、同一条件で得られた破壊遅れ時間の最小値を t_F として採用した。形成遅れ時間の結果については後に検討を加える。

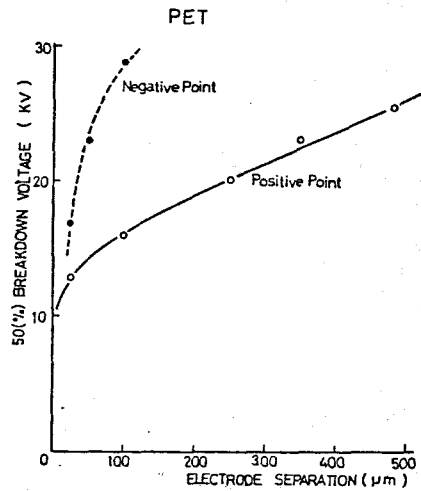
前章においては、各条件での破壊強度の比較は、形成遅れ時間の和である平均遅れ時間 (t_M) を目安として用いたが、すでに述べたように統計遅れ時間が本章における結果からは求められないので、別の方法を用いる必要がある。試料として採用した5種類の高分子絶縁物の破壊特性の比較は、50%破壊電圧にて行なった。ここで50%破壊電圧の求め方について述べる。(5・2)～(5・7)図に示されるようなラウエプロットの100ns時点での破壊確率($1 - n_f/n$)と印加電圧の関係を求める。

(5・8)図に、例として、PETの正針におけるその関係を示している。縦軸の破壊確率は、正規確率密度分布の尺度で記されている。もし、図において、プロットが直線となれば、破壊電圧はある電圧を中心に、正規分布しているといえる。

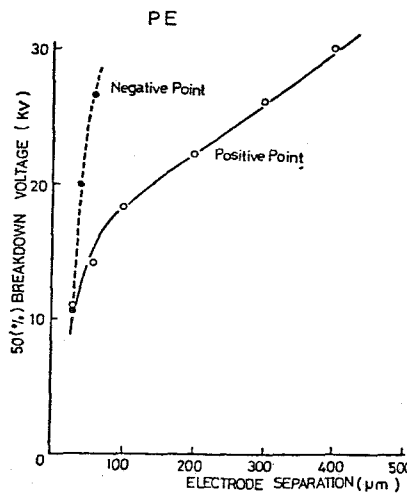
(5・8)図におけるプロットの直線性は比較的良い。他の場合においても、多くの場合、その直線性は良いので、ここでは、すべての場合に各条件での破壊電圧は正規分布していると仮定して、正規確率紙における破壊確率と印加電圧の関係に対し、最小自剰法による近似直線を求め、この直線が $(1 - n_f/n) = 0.5$ となる電圧を50%破壊電圧 (V_B) として求めた。



(5・8) 図 印加電圧と100 ns 時点での破壊確率との関係



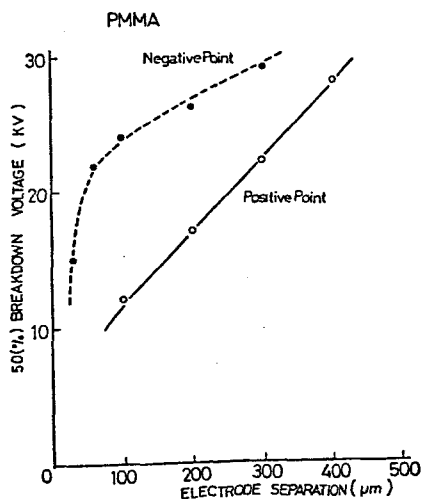
(5・9) 図 50%破壊電圧と電極間隔の関係



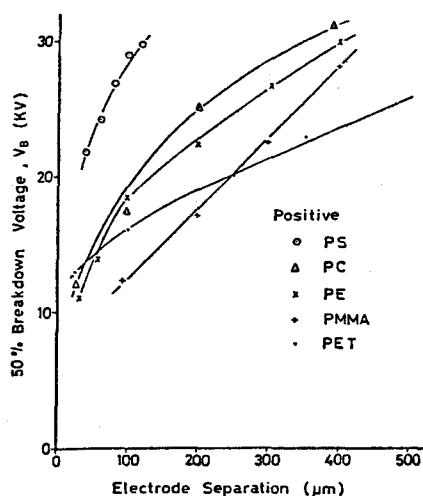
(5・10) 図 50%破壊電圧と電極間隔の関係

このようにして求めた V_B と電極間隔の関係について、(5・9)図、(5・10)図にそれぞれPETとPEの結果を例に挙げて示す。図には正針および負針の結果を同時に示しているが、明らかに顕著な極性効果が存在し、正針の場合の方が負針の場合に比べはるかに破壊しやすいことがわかる。しかし、この極性効果も電極

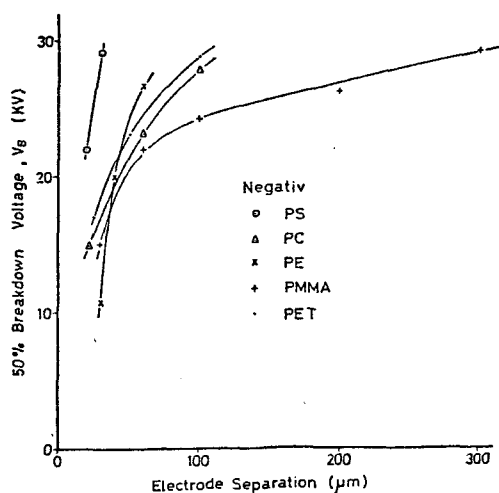
間隔の減少とともに減少し、あるいは消滅する。この理由の一つとして挙げ得ることは、電極間隔の減少は平等電界に近づくことを意味し、極性による差が減少する点である。PCとPSについても例に挙げたPETとPEの結果と同様な極性効果が得られている。PMMAについても(5・11)図に示されるように極性効果が存在するが、特徴的な点は、負針においても比較的電極間隔の大き



(5.11) 図 50%破壊電圧と電極間隔の関係



(5.12) 図 50%破壊電圧と電極間隔の関係



(5.13) 図 50%破壊電圧と電極間隔の関係

な試料も破壊しやすく、電極間隔の大きな領域での極性による差が他の高分子試料に比べ小さいことである。次に各高分子材料の V_B と電極間隔の関係を、正針の場合と負針の場合に分けてそれぞれ(5.12)図、(5.13)図に示した。いずれの極性においても、電極間隔により高分子試料の破壊電圧の順位が異なるので、単純に各高分子材料の破壊電圧の順位づけをすることはで

きない。しかし、PS は正針および負針において、ともにその破壊特性は抜きんで高く、本実験の条件では極めて破壊し難い材料であることが明らかとなった。例えば、正針の場合、30KVの V_B に対応する電極間隔は約100 μm であるが、他の高分子では約400 μm あるいはそれ以上で、同一印加電圧で4倍以上の電極間隔の試料が破壊する。他方、破壊しやすい材料としては、電極間隔

の大きな領域において、正針では PET, 負針では PMMA を挙げるができる。またこれらの点からも理解し得る点であるが、正針と負針の破壊電圧の順位は必しも一致しない。他の例として、正針においては PET は PC よりもはるかに破壊しやすいが、負針においては、その差は少いが、むしろ PC の方が破壊しやすい点を示すことができる。

これまで述べてきた本実験条件で得られた破壊特性を、過去において平等電界中での直流電圧の実験で得られた本質的破壊強度とされる特性と比較すると両者に相関性がみられない。本実験は不平等電界中で行なわれているのであるから、破壊電圧を平均電界に変換した値が、平等電界中での破壊電界強度を下回るのは当然である。しかし、個々の材料の比較において相関性がみられない点は重要である。例えば Oakes⁽¹⁰⁾ が得た PS と PMMA の室温における破壊電界はそれぞれ $6\text{MV}/\text{cm}$ と $10\text{MV}/\text{cm}$ である。これに対し、本実験で得られた結果は、正針、負針ともに PS の方がはるかに破壊し難いことを示している。したがって針対平板電極構成における極めて短時間領域での破壊機構は、平等電界中での直流電圧印加の場合の破壊機構と単純に結びつけることはできない。

本実験で得られた個々の高分子材料の破壊特性をその物理化学的構造の差から論じることとも今の所、困難がともなう。各高分子材料の化学構造については (5・1) 表に示した。電子エネルギーの吸収因子となるベンゼン環の有無も、破壊特性に差を与える一つの要因となり得ると

PE	$-\left(-\text{CH}_2\text{CH}_2\right)_n-$
PET	$-\left(-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{COO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{COO}-\right)_n-$
PC	$-\left(-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{C}(\text{CH}_3)_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{OCO}-\right)_n-$
PS	$-\left(\text{H}-\text{C}-\text{CH}_2-\right)_n-$ 
PMMA	$-\left(\text{CH}_3-\text{C}-\text{CH}_2-\right)_n-$ 

(5.1) 表 各高分子材料の分子構造

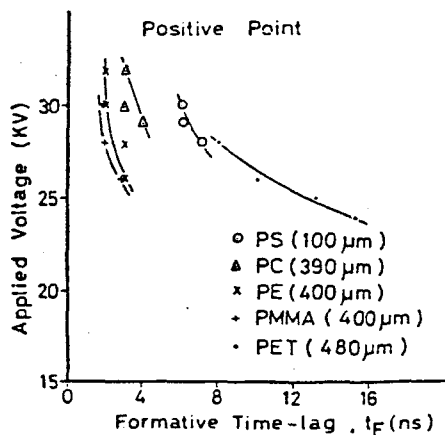
思われる。しかしながら、ベンゼン環を有するPS, PET, PC とベンゼン環を有しないPE, PMMA の2つのグループに分けて考えた時、それぞれのグループのみに共通する破壊特性の因子を見い出すことはできない。高分子材料の特性の比較として、結晶性高分子であるか無定形高分子であるかの問題も重要な要素である。実験を行なった5つの高分子材料のなかで、結晶性高分子とされるのはPEのみであるが、特にPEの破壊特性に特徴的な点を見い出し得ない。通常の重合法では完全に無定形高分子であるとされているPSとPMMAの破壊特性も全く異なる。本実験は物理化学的構造の全く異なる5種類の高分子について行なわれ多くのパラメータが含まれているから、結晶性高分子か無定形高分子かの差が破壊特性にどのように影響するかを知ることはできない。もしその影響を知ろうとするならば一つの高分子材料について結晶化度を変え、その特性の変化をみる必要がある。しかし少なくとも、結果から判断して破壊特性を決定的に支配している要素ではないといえそうである。

すでに述べたように、実験を行なった高分子材料のなかでPSは極めて高い破壊特性を示す。この事実はPSが油中ストリーマの阻止能力において非常にすぐれているとの報告⁽¹¹⁾と密接な関係があると思われる。油中ストリーマが高分子フィルムとの界面に達した状態は、いわばフィルムの表面に集中電界を与えた状態と同じであると考え得る。本実験の結果を考慮すれば、PSは単に油中ストリーマの進展を阻止する能力にすぐれているのではなく、針電極のような極めて高い電界の集中する状況において、他の高分子材料に比較して破壊し難い性質を有していると考えられる。その物理的性質は不明であるが、放電路(ストリーマ)先端の高電界を維持して進展することが困難な性質をPS自身が持っていると考え得る。Dittmer⁽¹²⁾は立ち上りの鋭い(約10ns)パルスを印加した時のインパルスストリーマの進展長が、PSの場合、PMMAに比較し

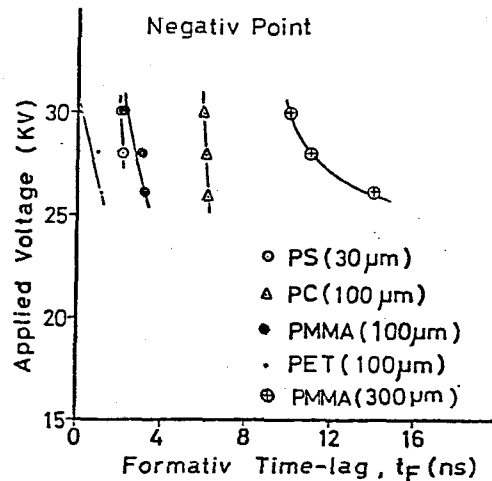
はるかに小さいことを見い出している。この結果も、本実験で得た結果と直接な関係があると考ええる。

〔5・3・2〕 形成遅れ時間

前項においては100 ns 時点での50%破壊電圧の結果を中心に検討を加えた。しかし、実験は個々の試料の一つ一つについてその破壊遅れ時間を測定しているので、それからの情報も示すことができる。同一条件で得られた破壊遅れ時間の分布は(5・1)図～(5・7)図に示したようなラウエプロットを用いれば示すことができる。ここでもしラウエプロットに直線性があれば、前章と同様、個々のラウエプロットを直接に示すことなく、形成遅れ時間、統計遅れ時間あるいは平均遅れ時間を用いて、遅れ時間の最小値、そのばらつきの度合あるいは分布を示すことができる。しかし本章における結果は、一部の例外を除いてラウエプロットは直線とならなかったもので、その方法を用いることはできない。ただし、遅れ時間の最小値を意味する形成遅れ時間(t_F)は示すことができる。形成遅れ時間の結果については、正針、負針の両極性における各高分子材料、各電極間隔、各印加電圧のすべての条件のそれぞれに対し、その結果を得ている。その結果の多くは極めて短かく、高々10数 ns である。得られた形成遅れ時間は電極間隔の大きいほど大きくなる傾向があるので、ここでは各高分子材料について主にその電極間隔が最大の条件で得られた結果を中心に(5・14)図、(5・15)図にそれぞれ正針と負針の場合について示す。正針においてはPET(480 μm)の t_F の結果が大きい値を得ているが、これはPETの正針での破壊電圧が他に比べ低く、電極間隔の大きな試料を相対的に印加電圧で実験しているためと思える。これに対してPSの場合、その破壊電圧が高いので電極間隔の小さな試料で実験は行われているが、得られた t_F の値は大きい。すなわち同程度の印加電圧においてPS(100 μm)の t_F は6～7 ns であ



(5.14) 図 印加電圧と形成遅れ時間



(5.15) 図 印加電圧と形成遅れ時間

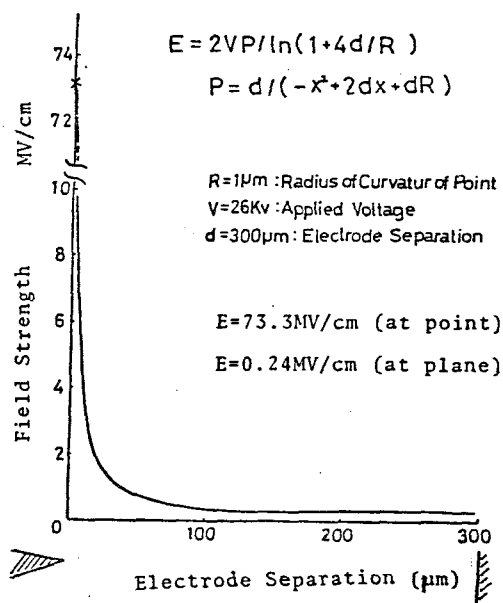
り、電極間隔の大きな(約400 μm) PE, PMMA, PC の t_F の結果(2~4 ns)よりも大きい。PS 以外の電極間隔100 μm の試料に印加電圧28KV を加えればその破壊遅れ時間は0.5 ns 以下である。負針においてはPMMA(300 μm) の t_F の値が大きい結果を得ている。これは正針のPET(480 μm) の場合と同様、その電極間隔が大きいためである。電極間隔の同じ100 μm の場合で比較すれば、印加電圧26~30KVにおいて、PCが最も大きく、6 ns であり、PMMA は2~3 ns, PET は2 ns 以下である。このようなPCの t_F がPETのそれよりもかなり大きいという結果は、すでに述べた負針での破壊電圧は前者の方がむしろやや低い実験結果と照し合せてみると興味深い。この点は正針において、PETの方がPC よりもはるかに破壊しやすい実験事実と何んらかの関連(例えば電子の移動度)がある可能性がある。なお負針におけるPEの t_F の結果を(5.15)図に記していないが、これは得られた t_F はすべて0.5 ns 以下であったためである。

以上、各高分子材料の形成遅れ時間の結果とそれに対する若干の検討を加え

た。しかし、各高分子材料の結果の差を物理化学的構造の差から論ずることは50%破壊電圧の結果においてと同様できない。

〔5・3・3〕 破壊機構

これまで得られた実験結果について述べ、さらにそれに対する検討を行ってきたものの、本実験条件における各高分子材料の破壊機構そのものについてはほとんど触れていなかった。実験を行なった5種類の高分子材料の一つ一つについてそれぞれの正針および負針における破壊機構を論ずることは、50%破壊電圧や形成遅れ時間の結果の差を物理化学的構造の見地から論じえなかったのであるから、当然不可能なことであると思える。しかし、各高分子材料の結果の差はともかく、全体的にみれば、5つの高分子材料に共通的な破壊機構が存在すると考える。いずれの材料においても極性効果が存在し、正針の方が負針の場合よりも破壊しやすい。この点は前章のアルカリハライド結晶の結果から類推すれば、正針の場合は正ストリーマ破壊の可能性が強い。正針にしる負針にしる、平均電界にすればその本質的破壊電界をはるかに下回る印加電圧で非常に短時間で破壊が完了するためには、電極間の初期的に与えられる静電界の分布がすみやかに変化する機構を考えねばならない。電圧が印加された瞬間の針先端より対平板電極垂線上、距離 x での電界強度は、前章での(4・3)～(4・5)式で与えられるが、ここで一つの例として $R=1\mu\text{m}$, $d=300\mu\text{m}$, $V=26\text{KV}$ とした場合の静電界の分布を(5・16)



(5・16) 図 電極間の電界分布

図に示す。最も電界の高い針先端部 ($x = 0$) においては、その電界強度は極めて高く $7.3.3 \text{ MV/cm}$ にも達する。この値はいずれの高分子材料の本質的破壊電界強度よりもはるかに高い。しかし、電界は針先端から遠ざかるとともに急速に減衰し、わずか $x = 10 \mu\text{m}$ 離れた地点での電界は $E = 3.5 \text{ MV/cm}$ であり、すでにいずれの高分子材料の本質的破壊電界強度を下回っている。図からわかるように電極間の大部分の領域でその電界強度は 1 MV/cm 以下であり、本質的破壊電界よりもはるかに低い電界強度の領域で占められている。しかるに、電圧印加後ナノ秒オーダーの極めて短時間において破壊が完了する事実がある。この事実を理解するためには、電圧印加と同時に針先端より放電路がその先端の電界を極めて高く維持しつつ急速に進展する機構を考える必要がある。このことにより、上で述べた初期的に支えられる静電界分布が時間とともに急速に変化し、本質的破壊電界強度よりも高い電界領域が対電極に向かって前進し、いわば針状の放電路による電極が前進するため、平均電界にすればかなり低い印加電圧でも破壊が起ると考える。正針の場合は、前章において示したアルカリハライド結晶 (KCl, NaCl) の場合と同様、正ストリーマ破壊と考える。すなわち電圧印加と同時に極めて高い電界を保つこととなった針先端部に向かって、その近傍より多数の電子なだれが起る。残された鋭利な形状を持つ正イオン群の先端はやはり高い電界を維持しているため、その先端に向かって多数の電子なだれが起るという現象が連続的に繰り返えされ、急速な正ストリーマの進展が起り平板電極に達した時点で大電流が流れ破壊が起る。正針における高分子材料間の結果の差は、その理由は不明であるが、各高分子間における正ストリーマの進展の難易さに基づくと考える。何んらかの理由で、PET の場合は、その進展が最も容易であり、PS の場合はかなり困難であると考えられる。

負針の場合は、一般的にいて、電圧印加と同時に多数の電子が針先端から

注入され、それらを初期電子とする電子なだれ群が進展するが、その先端は広がり、平等電界に近づく傾向があると思われる。したがって、負針の場合は正針の場合に比べ破壊が生じにくい。しかしPMMAの場合はかなり電極間隔の大きな試料(300 μm)でも破壊しうるので、負ストリーマを形成していると考えられる。すなわち先行する電子なだれ群によって形成された正イオン領域に後続の電子なだれが進展し、正負両電荷が濃密に混在するプラズマ状態を形成してなだれ先端の電界を高く保持する機構が生じていると思われる。

いずれにしろ、平均電界に換算した時かなり低い印加電圧で破壊する場合は、その先端の電界を高く維持し高速で進展する放電路の存在を考えねばならない。PETやPCにおいても、平均電界にすればその本質的破壊電界をかなり下回る電圧で破壊が生じ得るので、負ストリーマの形成がなされていると思われる。

このような破壊機構の考え方に基づいて、得られたラウエプロットが一部の例外を除き直線とならない事実を説明してみる。ラウエプロットが直線であることは時間に対する破壊確率が一定であることを意味する。したがって、時間とともに試料内の物理的状況が変化している場合は、その直線性が失われることは十分あり得る。正針の場合、正ストリーマは電圧印加と同時に針先端から、破壊路などから推定して、トリー状に枝分れして進展するものと思われる。前章におけるKCl(100)の場合のように対電極に垂直に一本のストリーマが進展するのでないから、ストリーマ先端の電界 $E_{s,t}$ の変化は、(4・11)式のように簡単に表しえないが、定性的にみて、ストリーマ先端の電位の低下とともに電界 $E_{s,t}$ も減少すると思われる。 $E_{s,t}$ が十分に高ければ正ストリーマは高速で進展するが、本質的破壊電界に近づければその速度も急速に低下あるいは停止すると思われる。同一条件においても、様々なばらつきの要因により、 $E_{s,t}$ が十分高いうちに対電極に達した試料は比較的短時間で破壊が完了するのに対

し、正ストリーマの進展過程において E_{st} が本質的破壊電界に近いある臨界の電界強度にまで減衰した試料においては、その速度が急激に低下あるいは停止し、その後時間が経過しても破壊が生じ難くなる。このようなことが生じればラウエプロットの直線性は失われると考える。すなわち、同一条件において、一部の試料は比較的短時間で破壊が起り、その時点までのラウエプロットの直線性は良いものの、残された破壊に至らなかった試料においては正ストリーマの進展を急激に低下させる試料の確率が増し、時間に対する破壊確率の減少が起り、ラウエプロットの勾配は急激にゆるやかなものとなる。もちろん、過電圧の度合いが増せば E_{st} が減少しないうちに対電極に達する試料の確率が増えついにはすべての試料が短時間には破壊が完了し、そのラウエプロットはその勾配が急な直線となるに違いない。

負針の場合においては、電子なだけ破壊とするならば時間とともに平等電界に近づく傾向があり、当然、破壊確率は時間とともに低下し、ラウエプロットの勾配も時間とともにゆるやかになると思われる。負ストリーマによる破壊の場合は、正ストリーマ破壊の場合と同様に考えて良いと思われる。

次に正針および負針における放電路の進展速度の差について論じる。ここでは便宜上、正針の場合は正ストリーマ、負針の場合は負ストリーマとする。高分子材料の場合はその放電路は対電極に向って直進するとは思いが、簡単にするため電極間隔をストリーマの進展距離とみなし、この値を形成遅れ時間で割った値をストリーマの進展速度 v_{st} とする。正針と負針とでは破壊電圧が大きく異なることが多いので、全く同一条件で比較することは一般的にはできない。極性差の少い P M M A の場合について比較すると、電極間隔 $300\mu\text{m}$, 印加電圧 26KV において、その t_F は正針の場合 2ns , 負針では 12ns である。よってストリーマの進展速度は正針で $v_{st}^+ = 1.5 \times 10^7 \text{cm/sec}$, 負針で $v_{st}^- =$

$2.5 \times 10^6 \text{ cm/sec}$ となり，正ストリーマの方が負ストリーマよりも1桁近く速い。電極間隔 $100 \mu\text{m}$ のPCの場合でも，印加電圧 $26 \sim 30 \text{ kV}$ において，負針ではその t_F は 6 ns であるのに対し，正針では $16 \sim 18 \text{ kV}$ において t_F は $1 \sim 2 \text{ ns}$ である。印加電圧 26 kV を加えたところ t_F は 0.5 ns 以下となる。したがって，負ストリーマの速度は $v_{st}^- = 1.7 \times 10^6 \text{ cm/sec}$ であり，正ストリーマは $v_{st}^+ = 2 \times 10^7 \text{ cm/sec}$ 以上となり，やはり正ストリーマの方が1桁速い。他の高分子材料でも実験条件を同一にすれば，正ストリーマが負ストリーマより速いことが類推できる。この事実は気体放電⁽¹³⁾あるいは液体誘電体⁽¹⁴⁾において正ストリーマの方が負ストリーマよりも速いという事実と共通する。

5.4 結 論

本章においては，5種類の高分子材料に対し，針対平板電極構成のもとでの破壊遅れ時間を測定し，得られた結果に検討を加えた。要約すれば次のようになる。

(1) 破壊遅れ時間をラウエプロットにて整理すると，負針におけるPS以外はいずれの材料も，先針，負針の両極性において，良い直線性を得ることはできない。ある時間までの直線性は良いものの，その後プロットの勾配は小さくなり，時間に対する破壊確率が低下する。

(2) 100 ns 時点での50%破壊電圧においてはすべての材料と極性効果がみられ，正針の方が負針の場合より破壊しやすい。この極性効果は電極間隔の減少とともに減少あるいは消滅する。この理由の一つとしては，電極間隔の減少は電界分布が平等電界に近づくことを意味し，極性による差が少なくなる点を挙げることができる。ただし，PMM Aの場合は電極間隔の大きな領域でも比較的極性差が少い。

(3) P S は正針，負針の両極性においてその破壊電圧が抜きんでて高い。他方，正針においてはPET，負針においてはPMMA が電極間隔の大きな領域で最も破壊しやすい材料である。

(4) 本実験条件のもとで得られた各材料の破壊特性は，正針，負針のいずれにおいても，本質的破壊電界強度とされる直流電圧印加の平等電界中で得られる値と全く相関性がみられない。また，得られた各材料間の結果の差を，物理化学的構造の差から論じるには困難がともなう。

(5) いずれの材料も，相対的には放電路の進展速度は正針の方が負針の場合よりはるかに速い。

(6) 正針の場合は，正ストリーマの進展の難易はあるにしろ，いずれの材料も正ストリーマ破壊であると考え。負針では負ストリーマ破壊もしくは電子なだれ破壊であると考え。

5.5 文 献

- (1) G.G Hudson and L.B.Loeb; Phys.Rev.Vol.123 p.29 (1961)
- (2) Von.Engel; Ionized Gases (1965) Clarendon Press, Oxford
- (3) 有井，松本，木谷；第8回電気絶縁材料シンポジウム予稿集 Ⅲ-2
p.85 (昭50)
- (4) 有井，木谷，川村；電気学会放電，絶縁材料合同研究会資料
ED-76-11, EIM-76-18 (昭51)
- (5) E.J.Mc Mahon; IEEE Trans.Eleactr.Insul Vol ET-13 p.277
(1978)
- (6) S.Zoledziowski and S.Soar; IEEE Trans Elesul Insul Vol.ET-7
(1972)

- (7) B.Bolton, R.Cooper and K.G. Gupta ; Proc. IEE Vol.112(1965)
- (8) 縄田，河村，家田；電気学会論文誌 Vol.95-A p.423 (昭50)
- (9) 吉村，太田，佐竹，能登；電気学会論文誌 Vol.96-A p.433 (昭51)
- (10) W.G.Oakes ; Proc.I.E.E Vol.96 I p.37 (1949)
- (11) 月岡，柴藤；電気学会論文誌 Vol.98-A (昭53)
- (12) B.Dittmer ; Archiv für Elektrotechnik Bd.48 p.287 (1963)
- (13) たとえば，放電ハンドブック 鳥山編 電気学会刊
- (14) 森川；電気学会論文誌 Vol.92-A p.27 (昭47)

第 6 章 複合誘電体（液体と固体）の正ストリーマ破壊

6.1 緒 言

第 4 章と第 5 章においてはそれぞれアルカリハライド結晶と高分子絶縁物に対し、針対平板電極構成のもとで ns パルスを印加した場合の破壊特性の結果について論じた。その結果のなかで特に重要な点として顕著な極性効果を挙げることができる。すなわち、正針の場合は、負針の場合よりもはるかに破壊が起りやすい事実である。その原因は正針の場合においては針先端より高い電界を維持した放電路の進展がみられるという気体放電における正ストリーマ破壊⁽¹⁾と類似の機構により、著しい破壊電圧の低下が生じるためである。このようなストリーマの進展ならびに極性効果は第 4、第 5 章で述べた固体誘電体ばかりでなく、シリコン油や n-ヘキサンのような液体誘電体においてもみられることは、筆者達により明らかにされている⁽²⁾⁽³⁾。正ストリーマの進展が多くの絶縁物の破壊値を下げる事実があるならば、正ストリーマのふるまいを研究することは、破壊値を下げる要因を知るという絶縁問題の本来の目的にかなうものであり、極めて重要なことであると考え。本章においては、そうした正ストリーマのふるまいのなかで、液体と固体の複合誘電体構成のもとで正ストリーマがいかに進展するかという問題に着目し、実験を行い得られた結果について論じる。

一般に行なわれる複合誘電体の破壊現象の研究は、構成される絶縁物の誘電率の差もしくは破壊特性自身の差から一方の絶縁物中に部分放電が発生し、電界の不整および集中が生じ放電路の進展が起り、全路破壊に導かれる形式のものが多⁽⁴⁾。しかし、本章において論じる研究は、針電極を用いることによりあらかじめ集中電界を与えて正ストリーマを発生させ、それが一方の絶縁物の

中から他方の絶縁物中へといかに進展して行くかに焦点を絞ることによりなされたものである。すなわち、針電極に正の ns パルスを印加し、それと同時に針先端部に生じた正ストリーマが液体および固体絶縁物との界面を経て、平板電極に達するまでの時間をこれまでと同様、パルス波形より測定した。

試料はともに単一物質としての正針における結果が得られているシリコン油と KCl (100) の組み合わせで行なわれた。

実験は次の場合になされた。

(1) シリコン油に生じた正ストリーマが KCl (100) に進展する場合

[oil $\rightarrow$ KCl (100)] の実験

(2) KCl (100) に生じた正ストリーマがシリコン油に進展する場合

[KCl (100) $\rightarrow$ oil] の実験

すでに結果を得ているように、正ストリーマはシリコン油よりも KCl (100) におけるが、その進展は容易であるから⁽²⁾⁽⁵⁾ [oil $\rightarrow$ KCl (100)] の実験は、正ストリーマがその進展の困難な物質から容易な物質へ向う場合で、[KCl (100) $\rightarrow$ oil] の実験はその逆となる。両実験の結果に差が生じることが期待できる。また両実験の結果とシリコン油および KCl (100) のそれぞれの単一物質としての正針における結果と比較するのも興味深い。

6.2 実験方法と試料

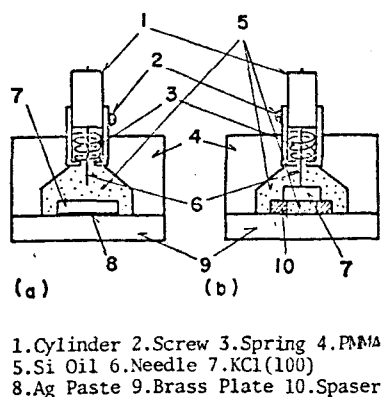
用いたパルサーなど主な実験方法はこれまでの章において述べた方法と同一である。試料に用いた KCl (100) は第 4 章で述べたものと同一で、シリコン油はジメチルシリコンオイル (東芝, TSF-451, 100 cs) を用いた。

[oil $\rightarrow$ KCl (100)] の実験の電極構成は (6.1) 図(a)に示す。オイルギャップ長は KCl (100) における針の反射像を利用しつつ、前章と類似の方法で

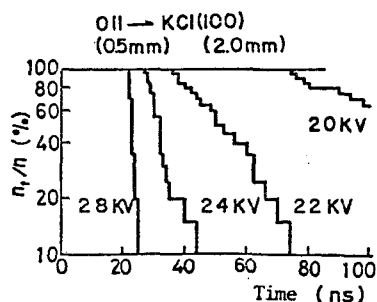
決定する。〔KCl(100)→oil〕の実験の電極構成は(6・1)図(b)に示される。シリコン油層の厚さはスペーサ(高分子フィルム)にて決定され、KCl(100)スペーサ、平板電極は微量の瞬間接着剤に固定している。針電極とKCl(100)の間隔は零に保たれ、小ねじにて固定している。なお針電極は前章と同様、電解研磨によりその先端の曲率半径を $1\mu\text{m}$ 以下に保っている。

上で述べた方法で作成された試料は、いずれの実験の場合も、小セル(底面が真ちゅう板、側面がアクリル板)内に入れられ、シリコン油(新油)を満し、真空脱気して後実験に供した。

なお、比較される単一物質としてのKCl(100)およびシリコン油の正針の結果は報告した結果ばかりでなく、本章の研究のため新たに多くの実験を行い得られたものであることを付記しておく。



(6.1) 図 電 極 構 成



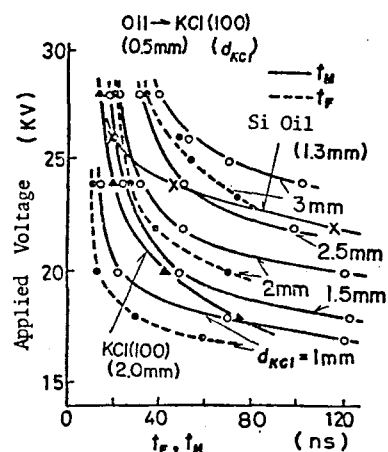
(6.2) 図 ラウエプロット図

6.3 実験結果と検討

〔6・3・1〕 破壊遅れ時間の特性

〔oil → KCl(100)〕の実験にて得られたラウエプロットの例を(6・2)図に示す。その直線性は良いので第4章と同様、最小自乗法による近似直線を求め(4・1),(4・2)式を適用して、 t_F 、 t_s および t_M を求めることができる。

(6・3)図には、オイルギャップ長を一定(0.5 mm)にして KCl(100)の厚さ(d_{KCl})をパラメータとした実験で得られた t_F , t_M と印加電圧との関係を示す。 t_s については第4章の場合と同様各条件での差が比較的少ないので、その判別が困難であるから図面に直接記さなかった。間接的には t_s は t_M と t_F の差であるから



(6・3) 図 印加電圧と遅れ時間の関係

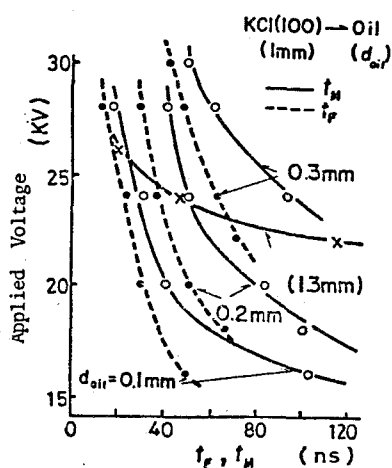
図より知ることができる。ここで KCl(100) およびシリコン油単独の場合の結果と比較する。(6・3)図には KCl(100)(2 mm)とシリコン油(1.3 mm)の結果(t_M)を記している。[oil(0.5 mm)→KCl(100),(1.5 mm)]の結果と比較すると電極間隔は等しいが、その t_M は前者の方が大きい。[oil(0.5 mm)→KCl(100)(1 mm)]とシリコン油(1.3 mm)との結果と比較すると、前者の方が電極間隔は大きいがその t_M は小さい。一般に電極間隔が等しければその t_M は同一印加電圧に対し、KCl, [oil→KCl(100)], シリコン油の順に大きくなる。このことは t_F についても同様である。したがって [oil→KCl(100)]の実験の破壊遅れ時間の特性は、KCl(100)とシリコン油のそれぞれの単一物質としての特性の中間的なものとなる。

[KCl(100)→oil]の実験においても、そのラウエプロットの直線性は良い結果が得られるので、 t_F , t_M を求めることができる。(6・4)図に KCl(100)の厚さ一定(1 mm)として、シリコン油層の厚さ(d_{oil})をパラメータとして実験の t_F , t_M と印加電圧との関係を示す。(6・3)図と比較して特徴的なことは、過電圧の度合いを増加させても、ある電圧以上では t_F , t_M の減少の度合いが少ないことである。この点については後に述べる。ここで、

図中に記したシリコン油（1.3 mm）の結果と電極間隔の等しい〔KCl（100）（1 mm）→oil（0.3 mm）〕の結果を比較すれば後者の方がその t_M は大きい。したがって、〔KCl（100）→oil〕の実験での t_M が、その構成要素のうちで t_M を大きくする要素であるシリコン油の単独での結果（ t_M ）よりも更に大きくなるとの結果が得られた。 t_F についても同様なことがいえる。（6・3）図から得られた結果も加えると、破壊遅れ時間の特性（ t_F ， t_M ）は一般的に同一電極間隔，同一印加電圧ならば，KCl（100），〔oil → KCl（100）〕，シリコン油，〔KCl（100）→oil〕の順に大きくなる。

〔6・3・2〕正ストリーマの平均進展速度

行なわれている実験においては、電圧印加と同時に極めて高電界となる針先端から正ストリーマが進展を開始し、対電極に達した時点で大電流が流れ破壊すると考えられるので、破壊遅れ時間は正ストリーマが針先端から対平板電極に達する時間と一致する。したがって、正ストリーマが針先端から対電極に達する平均の進展速度は、その進展路を電極間隔(d)



（6・4）図 印加電圧と遅れ時間の関係

とみなせば、 d を破壊遅れ時間で割った値となる。ただし、第4章で明らかにしたように、正ストリーマは電極間を一定速度で進展しているのではなく、その進展とともに減速していると考えられ、あくまで平均速度であることに注意を要する。また、同一条件においても破壊遅れ時間にばらつきが生じるが、これは正ストリーマの進展として考えれば、同一条件においてもその進展過程において、その速度の変化の仕方に差が生じるためと考えられる。この点は第4章で

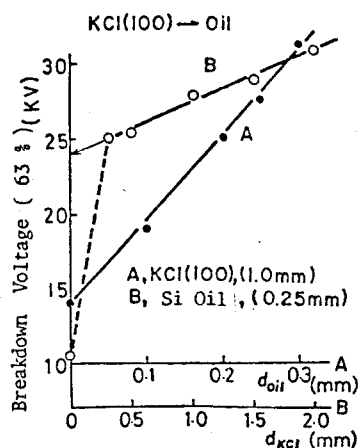
も述べたように、ミクロ的にみれば正ストリーマ先端に向う個々の電子なだれの初期電子の放出の遅れ，すなわち統計遅れ時間の和に差が生じるためである。したがって， d/t_F は電極間隔を最小の遅れ時間で割った値であるから，同一条件で正ストリーマが最も速く進展する場合で，最大の平均進展速度 (v_F) を意味し， d/t_M は d を平均の遅れ時間で割った値であるから，同一条件での正ストリーマのみかけ上平均された平均進展速度 (v_M) である。

これらの平均進展速度 (v_F, v_M) は，前項で述べた破壊遅れ時間の特性から考え，同一電極間隔，同一印加電圧ならば， $[\text{KCl (100)} \rightarrow \text{oil}]$ ，シリコン油， $[\text{oil} \rightarrow \text{KCl (100)}]$ ， KCl (100) の順に大きくなる。したがって $[\text{oil} \rightarrow \text{KCl (100)}]$ の実験においては平均進展速度も， KCl (100) とシリコン油の中間的な値を持つ。この場合，正ストリーマはシリコン油中ではシリコン油固有の進展速度， KCl (100) 内に侵入して後は KCl (100) 固有のふるまいで進展し，界面においてその進展は防げられないと考えて不都合はない。他方， $[\text{KCl (100)} \rightarrow \text{oil}]$ の実験では，その正ストリーマの平均進展速度がシリコン油単独の場合よりも更に遅くなる。これは KCl (100) を経てシリコン油層に進展する正ストリーマは界面において何んらかの影響を受けその後のシリコン油層中での進展が困難となるためと推定される。しかし，本実験においては，破壊遅れ時間を正ストリーマが針先端から両絶縁体の界面に達するまでの時間と，界面から対平板電極に達するまでの時間に分離して知ることとはできないので，シリコン油層中での正ストリーマのふるまいを直接的に知ることとはできない。

〔6・3・3〕 63%破壊電圧からの検討

ここで視点を変え，破壊電圧値の立場から界面の効果について検討してみる
(6・4) 図における t_M と印加電圧の関係から，各条件における $t_M = 50 \text{ ns}$

に対応する印加電圧を求めれば、この値はその条件での 50 ns の電圧パルスに対する 63% 破壊電圧値 (V_B) となる。このような V_B はシリコン油層の厚さを一定 (0.25 mm) として、 $\text{KCl}(100)$ の厚さ (d_{KCl}) をパラメータとした一連の実験より得られる (6・4) 図と類似の関係図からも求めることができる。(6・5) 図は V_B と d_{oil} および d_{KCl} の関係を示している。縦軸に V_B をとり、横軸 A に



(6・5) 図 d_{oil} と d_{KCl} に対する 63% 破壊電圧の依存性

は d_{oil} , 横軸 B には d_{KCl} をとっている。 $d_{\text{oil}} = 0$ での V_B の値は $\text{KCl}(100)$ (1 mm) の結果, $d_{\text{KCl}} = 0$ での V_B の値はシリコン油 (0.25 mm) の結果を示す。 V_B と d_{oil} の関係 (プロット A) も V_B と d_{KCl} の関係 (プロット B) もその理由は明白でないが直線関係となっている。これらの結果を検討するまえに, $\text{KCl}(100)$ およびシリコン油の単一物質としての正針の結果から得られる V_B と電極間隔 (d_{oil} , d_{KCl}) の関係について簡単に触れておく。 $\text{KCl}(100)$ については電極間隔 (d_{KCl}) は $0.25 \sim 4\text{ mm}$, シリコン油については電極間隔 (d_{oil}) は $0.25 \sim 1.3\text{ mm}$ の範囲で実験がなされたが, この範囲内では V_B と d_{KCl} および V_B と d_{oil} の関係はともに直線関係が得られた。その勾配は $\Delta V_B / \Delta d_{\text{KCl}} = 3.8\text{ KV/mm}$, $\Delta V_B / \Delta d_{\text{oil}} = 11\text{ KV/mm}$ であった。これらの結果を参考にしつつ, (6・5) 図の結果について検討を加える。同図から得られる情報について列記する。

- (i) A のプロットの縦軸との外挿点は $\text{KCl}(100)$ (1 mm) の結果と一致する。
- (ii) B のプロットの縦軸との外挿点 (23.5 KV) はシリコン油 (0.25 mm)

の V_B の値 (1 0.5 KV) と全く一致せずはるかに大きい。

(iii) A のプロットの勾配 $dV_B/d_{\text{oil}} = 5.3.5 \text{KV}$ の値は、シリコン油単独での値 (1 1 KV / mm) と比べ約 5 倍と大きい。

(iv) B のプロットの勾配 $dV_B/d_{\text{KCl}} = 4.7 \text{KV/mm}$ の値は、KCl (100) 単独での値 (3.8 KV / mm) に比較的近い。

(i)~(iv)項の結果で、最も界面の効果を端的に示しているのは(ii)項の結果である
と考える。縦軸に外挿する操作は、プロット B の直線関係が維持されていると
仮定して KCl (100) の厚さを零に近づけることである。KCl (100) およびシ
リコン油の単独での V_B と電極間隔との関係は、ともに 0.25 mm までは直線関
係を保つ事実から考えて、プロット B が KCl (100) の厚さを減少させ、電極
間隔を 0.25 mm にまで近づけることにより、その直線性を大きく失う理由は特
にない。したがって、プロット B の縦軸との外挿点は、KCl (100) との界面の
みが存在し、シリコン油層の厚さが 0.25 mm である仮想的な状態での V_B の推
定値とし得る。この値がシリコン油 (0.25 mm) の V_B の値に比べてはるかに大
きいことは、界面の存在により、シリコン油層が非常に破壊し難くなること
を示している。正ストリーマの進展速度として考えると、平均進展速度 ($\dot{v}_M$)
が同一の値 ($5 \times 10^5 \text{ cm/sec}$) となるためには、シリコン油単独の場合は印
加電圧 1 0.5 KV で良いのに対し、KCl (100) との界面が存在する場合は印加電圧
2 3.5 KV を要することを意味する。正針においてシリコン油 (0.25 mm) 単独の
試料に対し、2 3.5 KV を印加すれば、その破壊遅れ時間は常に 0.5 ns 以下であ
り、正ストリーマの平均進展速度は $5 \times 10^7 \text{ cm/sec}$ 以上となる。したがって、
KCl (100) を経た後、シリコン油層中を進展する正ストリーマの速度は、
針先端から直接シリコン油中に進展する場合の速度に比べ、極めて遅いもの
となることが示された。この外挿点の値は仮想的な値で実験的に直接求めるこ

とはできないが、シリコン油（ 0.5 mm ）の V_B の値（ 14.5 kV ）， KCl （ 100 ）（ 1 mm ）の V_B の値（ 14 kV ）などを考慮すれば、少なくとも実験が行なわれた中で KCl （ 100 ）の厚さが最も薄い場合の実験，〔 KCl （ 100 ）（ 0.3 mm ） $\rightarrow$ oil（ 0.25 mm ）〕の実験 V_B の値（ 25 kV ）とシリコン油（ 0.25 mm ）の V_B の値（ 10.5 kV ）と大きな差は、単に KCl （ 100 ）の厚さを薄くすることによる電極間隔の減少のためでなく、 KCl （ 100 ）が存在するか否か、あるいは KCl （ 100 ）とシリコン油との界面が存在するか否かによってほとんど決定され则认为る。

(i)項の結果、すなわちプロットAの縦軸との外挿点が KCl （ 100 ）（ 1 mm ）の V_B の結果と一致することは、界面の効果が存在するとするならば一見不可思議に思えるかも知れない。しかし界面の効果は正ストリーマの進展を界面にて一度停止させるのではなく、ただ界面以後のシリコン油中での進展速度をよりゆっくりとしたものにするに過ぎないと考えれば矛盾がない。すなわち界面の効果はシリコン油層の厚さに比例して現われるもので、その厚さが零と近づけばその効果もなくなり、外挿点は KCl （ 100 ）（ 1 mm ）の V_B の結果と一致する。

(iii), (iv)項のプロットの勾配の結果からも同様なことがいえる。プロットの勾配は厚さの変化に対する V_B の依存性を示し、勾配の大きいことはその物質が破壊し難いことを示す。プロットAの勾配がシリコン油単独での勾配に比べて非常に大きいことは、(ii)の結果と同様、 KCl （ 100 ）あるいはその界面の存在によりシリコン油層が破壊し難く、正ストリーマの進展が困難となることを示している。プロットBの勾配が KCl （ 100 ）単独の場合のそれと近いことは、界面に達するまでの KCl （ 100 ）内での正ストリーマのふるまいが、 KCl （ 100 ）固有のそれと近いものであると推定できる。

〔oil $\rightarrow$ KCl （ 100 ）〕の実験においても、(6・5)図に示されたような関係を求めることができる。(6・6)図に示すように、縦軸に V_B をとり、横軸

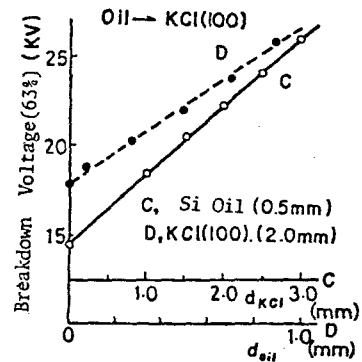
CにKCl(100)の厚さ(d_{KCl})，横軸Dにシリコン油のギャップ長(d_{oil})をとり，その関係を示す。横軸Cと V_B の関係は(6・3)図から得られた結果で， $d_{KCl} = 0$ の V_B の値はシリコン油(0.5 mm)の結果を示す。横軸DはKCl(100)の厚さ一定(2 mm)としてオイルギャップ長(d_{oil})をパラメータとした一連の実験から得られた結果で， $d_{oil} = 0$ はKCl(100)(2 mm)の結果を示す。

V_B と d_{KCl} の関係(プロットC)も V_B と d_{oil} の関係(プロットD)も直線関係が得られる。それぞれの直線の外挿点は，シリコン油(0.5 mm)およびKCl(100)(2 mm)の単独での結果と一致する。プロットCの勾配は $\Delta V_B / \Delta d_{KCl} = 4.5 \text{ KV/mm}$ ，プロットDの勾配は $\Delta V_B / \Delta d_{oil} = 9.5 \text{ KV/mm}$ であり，それぞれの単独での結果と近いものとなる。

以上の結果より，[oil $\rightarrow$ KCl(100)]の実験では界面の効果はなく，正ストリーマはシリコン油中ではそれ固有のふるまい，KCl(100)内に侵入した後，それ固有のふるまいで進展すると推定し得る。

[6・3・4] 正ストリーマの進展機構と界面の効果

(6・5)，(6・6)図からも(6・3)，(6・4)図からと同様，界面が正ストリーマの進展に与える影響は[oil $\rightarrow$ KCl(100)]の実験ではなく，[KCl(100) $\rightarrow$ oil]の実験では明らかに存在するとの結論が導れた。この[KCl(100) $\rightarrow$ oil]の実験でみられる顕著な界面の効果について，正ストリーマの進展機構を踏えながら検討してみる。まず，正ストリーマ破壊機構について述べる。針電極に正のnsパルスが印加されると同時に，極めて高電界となる針先端部に



(6・6) 図 d_{oil} と d_{KCl} に対する
63%破壊電圧の依存性

向って、その近傍の媒質内から放出された電子を初期電子とする電子なだれ群が生じる。電子群が針電極（陽極）に吸収され、残された正の空間電荷による高電界領域が生じると、これが正ストリーマの発生である。この正ストリーマ先端の高電界領域に向って電子なだれ群が生じ、新たに正の空間電荷による高電界領域が生じるとの現象が連続的に繰り返えされ、正ストリーマの進展となる。この正ストリーマが対電極に達した時点において電流が流れ、媒質が破壊される。正針の場合において、その破壊値が著しく低下するのは、正ストリーマ先端の電界強度 (E_{st}) が平均電界よりもはるかに高い電界を保ってそれが進展するためである。このような正ストリーマの進展は KCl 結晶においては、第 4 章において明らかにしたように電圧印加方向に無関係に (1 0 0) 軸に沿って直進する。[KCl (100) → oil] の実験においても、電圧印加と同時に針先端より 1 本の正ストリーマが対電極に対し垂直に (1 0 0) 軸に沿って進展しシリコン油との界面に達すると思われる。界面に達した時点での正ストリーマ先端の電界強度 (E_{st}) 次のように表し得る。

$$E_{st} = 2(V - \Delta V) / r \ln(1 + 4d/r) \quad (6 \cdot 1)$$

$$\text{ただし} \quad d > 10r$$

ここで、 V は印加電圧、 ΔV は KCl (100) 内での電位降下、 r は正ストリーマ先端の曲率半径、 d はシリコン油層の厚さである。

実験結果からの結論は、この後シリコン油層を進展する正ストリーマの進展速度が非常に低下することを示している。正ストリーマの進展はその先端の電界強度 (E_{st}) に支配されるので、速度の低下は E_{st} の減少を意味する。

(6・1)式において E_{st} を低下させる要因としては ΔV の増大と r の増大である。

ΔV については [KCl (100) → oil] の実験に限り KCl (100) 内での電位降下

が大きくなる特別の理由はない。また(6・4)図に示されているように、破壊遅れ時間(t_F , t_M)はその過電圧の度合いを増してもその減少は少なく、印加電圧に対する依存度は小さい。だからこの実験で遅れ時間の特性が大きくなるのは印加電圧以外の他の要素によることが大きいと思われる。一方、シリコン油中ではこれまで進展してきたKCl(100)内では電子なだれの形成が容易でないこと、あるいはシリコン油中で形成された電子なだれによる電子群がKCl(100)内へ円滑に移動し得ないような場合においては、界面近傍のシリコン油中での正ストリーマ先端の曲率半径(r)の増大は十分に起り得ると考える。そうなれば当然、 E_{st} の緩和現象が生じ、シリコン油層中での正ストリーマの進展速度は E_{st} の緩和が生じない場合に比べ低下するに違いない。この r の増大あるいは E_{st} の緩和現象を現段階で実験的に証明することはできないが、そのように考ねば界面以後のシリコン油層中での正ストリーマの進展速度の低下を説明するのは難しいと考える。

ところで、一つ考慮せねばならないこととして、シリコン油の本質的破壊強度がKCl(100)のそれに比べかなり高いと見込まれるので、KCl(100)内を進展して界面に達する直前の正ストリーマ先端の電界強度がはたしてシリコン油中に円滑に進展するに足る電界強度を有しているかという問題がある。この点について検討してみる。KCl(100)内での電位降下 ΔV は第4章における結果では(4・12)式で示されるように、正ストリーマ単位進展距離(mm)当り約5 kVである。〔KCl(100)(0.3 mm) → oil(0.25 mm)〕の実験を例に取れば界面に達する直前の電位降下は1.5 kVであると見込まれる。もし V_B に対応すれば電圧2.5 kVを印加すれば、界面直前の正ストリーマ先端の電位2.35 kVであり、その先端の曲率半径が十分小さければ、その電界強度はシリコン油の本質的破壊強度をはるかに上回っていると思われ、正ストリーマの進展に十分な

電界であると思われる。しかも、その先端の電位 23.5kV の値は、プロット B の縦軸との外挿点の値と一致しているから、正ストリーマが界面の直前に達した状況は、縦軸との外挿点を与える仮想的な状況に近い状況であるとの推察も成り立つと考える。さらに [KCl (100) → oil] の実験でみられる界面の効果は単に正ストリーマがより本質的破壊電界の高い物質へ向う場合だからとの理由によって生じるのではないことは、同様に正ストリーマがシリコン油からより本質的破壊電界の高い高分子材料 (PET および PC) へ向う場合の実験においては界面の効果が見い出されないことからわかる。すなわち PET もしくは PC フィルムの厚さを一定にしてシリコンギャップ長を変え実験を行い、(6・5) , (6・6) 図と同様、破壊電圧の変化をプロットした時、その縦軸との外挿点は第 5 章で示したようなそれぞれの高分子材料の単一物質としての破壊電圧の値と一致することを筆者らは見い出している⁽⁶⁾。[oil → KCl (100)] の実験において界面の効果がないのは、より正ストリーマの進展が容易な物質と向う場合であるから当然のことと思えるが、よりその進展が困難な物質へ向う場合においても顕著な界面への影響が存在する場合もあれば、特にその影響が見られない場合もあることを示している。

なお、一般の複合誘電体の破壊において問題となる構成物の誘電率の差が及ぼす影響については、これまで触れていない。しかし、正ストリーマの進展はその先端の電界強度に支配され、この高電界領域に与える誘電率の差の影響は少ないと思われる。少なくとも界面に達して以後の正ストリーマの先端の電界強度には影響がないと考える。

6.4 結 論

本章においては KCl (100) とシリコン油の組み合わせによる複合誘電体の正ストリーマの進展に伴う破壊について、2 種の実験を行なった。それぞれの実験で得られた結果と結論を要約すると次のようになる。

(1) [oil $\rightarrow$ KCl (100)] の実験での破壊遅れ時間および正ストリーマの平均進展速度の特性は、単一物質としての KCl (100) とシリコン油の正針での結果の中間的な値を示す。正ストリーマの進展に与える界面の影響はなく、正ストリーマはシリコン油中ではシリコン油単独の場合と同様にふるまい KCl (100) 内に侵入後は KCl (100) 固有のふるまいで進展すると考えられる。

(2) [KCl (100) $\rightarrow$ oil] の実験では、その破壊遅れ時間の特性は、正針での KCl (100) およびシリコン油単独での特性のいずれよりも大きく、正ストリーマの平均進展速度はいずれよりも小さい。界面に達するまでの KCl (100) 内での正ストリーマのふるまいは、KCl (100) 単独の場合と同様であるが、界面以後のシリコン油中での正ストリーマの進展速度は極めて低下する。これは界面近傍において、正ストリーマ先端の電界強度が緩和されるためと推察される。

このように同一構成物質からなる二通りの実験の結果に顕著な差が生じることが明らかとなった。[KCl (100) $\rightarrow$ oil] の実験における界面の効果は特に興味深い現象であると考ええる。本章における複合誘電体の正ストリーマの進展による破壊の実験は、KCl (100) とシリコン油の組み合わせによる場合の結果に限定しているが、他の組み合わせにおいても界面の問題は非常に重要であると考ええる。一部、定性的にその結果を述べたシリコン油から PET あるいは PC フィルムに正ストリーマが進展する場合は、界面の効果は存在しないが、PE フィルムやマイカに進展する場合は、沿面放電に転じやすいとの結果も得つつ

ある。このように複合誘電体の場合、界面での現象は複雑であり、一つ一つの組み合わせについて細心の注意を払い実験する必要がある。

6.5 文 献

- (1) G.G.Hudson and L.B.Loeb; Phys Rev Vol.123 p.29 (1961)
- (2) 有井, 松本, 木谷; 第8回電気絶縁材料シンポジウム予稿集 Ⅲ-2
p.85 (昭50)
- (3) 有井, 木谷, 河村; 電気学会放電絶縁線材料合同研究会資料
ED-76-11, EIM-76-18 (昭51)
- (4) たとえば放電ハンドブック 鳥山編 電気学会刊
- (5) 木谷, 有井; 電気学会論文誌 Vol.95-A p.165 (昭50)
- (6) 木谷, 有井; 第9回電気絶縁材料シンポジウム予稿集 Ⅲ-2
p.113 (昭51)

第 7 章 結 論

本研究は、平等電界中もしくは針対平板電極構成のもとで、主に固体絶縁体に対し、立ち上り 1 ns の高電圧パルスを印加し、その破壊遅れ時間を測定することにより、破壊機構の解明に努めたものである。第 3 章から第 6 章までの結果を総括し、本論文の結論とする。

(1) 高密度 P E フィルムにおいては 170°K 以下、P E フィルムでは室温において電極効果が存在し、Au 電極よりも Al 電極の方が統計遅れ時間が小さく破壊しやすい。これらの温度領域では、主に電極から注入される電子を初期電子とする電子なだれ破壊であるとし得る。他方、 215°K 以上の高密度 P E 373°K の PET では電極効果は消失する。これらの温度では、試料内部から放出された電子を初期電子とするいくつかの電子なだれの協力により破壊が生じると推定される。

(2) 高密度 PE フィルムの 10^{-8} sec 時点での 63% 破壊電圧強度 (F_B) の温度特性は室温以下では $\partial F_B / \partial T \approx 0$, それ以上では $\partial F_B / \partial T < 0$ である。

(3) 高密度 PE フィルムの形成遅れ時間は 77°K においては 0.5 ns 以下、室温では $6.4 \times 10^6 \text{ V/cm}$ において約 1 ns , 373°K では $4.6 \sim 5.0 \times 10^6 \text{ V/cm}$ において約 1 ns である。PET フィルムではいずれの条件においても 0.5 ns 以下であった。得られた形成遅れ時間から単一電子なだれ破壊と仮定して高密度 P E の移動度を求めると、 77°K において $0.6 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 以上、 298°K では $0.12 \text{ cm}^2/\text{sec} \cdot \text{V}$ 以上 373°K では $0.33 \text{ cm}^2/\text{sec} \cdot \text{V}$ 以上である。

(4) 針対平板電極構成のもとでの KCl (100) , NaCl (100) の破壊には顕著な極性効果が存在し、正針の方が負針の場合よりもはるかに破壊しやすい。破壊遅れ時間の特性は相対的に負針の場合よりも大きい。KCl (100) の平均破壊電

界強度においては、正針の場合厚さ効果が存在し、負針では存在しない。正針の場合、破壊電圧が低くなるのは気体放電の正ストリーマ破壊と類似の機構により、放電路先端の電界を高く維持して進展するためで、負針の場合は電子なだれの先端が広がり平等電界に近づく傾向があるため破壊値は正針ほど下らない。

(5) 正ストリーマの進展に際しては明瞭な発光現象がとれない、 KCl の場合は電圧印加方向に無関係に (100) 軸に沿って正ストリーマが進展し、 $NaCl$ の場合は (110) 軸、あるいは (111) 軸に沿って進展する。この事実が正針における $NaCl(100)$ の破壊電圧が $KCl(100)$ のそれに比べるとはるかに高くなるという結果に導く主な原因である。

(6) $KCl(100)$ における正ストリーマの進展速度はその進展とともに急激に低下する。同一条件における破壊遅れ時間のばらつきは、その進展過程において生じる。

(7) $KCl(100)$ に破壊電圧よりも低い電圧パルス印加した時、正針および負針において電圧印加時の放電による発光パルスと電圧消去時のバックディスチャージにともなう発光パルスがみられる。光量においても、極性効果がみられ、電圧が高かければ正針における光量の方が負針の場合よりもはるかに大きく、また印加電圧に対する依存性も大きい。

(8) $KCl(100)$ の破壊前駆光の光量にもプリストレス効果があり、正針において同一電圧パルスを繰り返し印加すればその光量は減少する。この効果は時間とともに消失し、レスト時間効果を示す。プリストレス効果の原因はプリストレスの電圧パルスによる正ストリーマの進展の後、正の空間電荷が残され、次の電圧パルスによる正ストリーマの進展を阻害しているためである。同様な理由により破壊現象にもプリストレス効果がみられ、プリストレスは破壊をよ

り困難なものとしている。他方、負針において同一電圧パルスを繰り返し印加すれば2発目の電圧パルスによる光量は非常に高くなるが、破壊現象にはあまり関係しない。

(9) 針対平板電極構成のもとでの高分子絶縁物の破壊にも極性効果が存在し正針の方が負針の場合よりも破壊しやすい。この効果は電極間隔の減少とともに減少あるいは消失する。但し、電極間隔の大きな領域においてもPMMAは例外的に極性差が少い。正針、負針の両極性において、PSがきわだって破壊し難い材料であるとの事実が明らかとされた。他方、正針においてはPET、負針においてはPMMAが破壊しやすい材料である。

(10) 針対平板電極構成における各高分子材料の短時間破壊の特性は、正針、負針のいずれにおいても、それぞれの本質的破壊電界強度とされる値と全く相関性がみられない。また、得られた各試料間の結果の差を物理的・化学的構造からも現段階では論じ得ない。

(11) いずれの高分子材料も、相対的に放電路の進展速度は正針の方が負針の場合よりもはるかに速い。正針の場合は、その進展の難易の差はあるにしろ正ストリーマ破壊であり、負針の場合は電子なだれもしくは負ストリーマ破壊であるとし得る。

(12) [oil → KCl (100)] の実験では、破壊遅れ時間および正ストリーマの平均進展速度の特性は、単一物質としてのKCl (100)とシリコン油の正針での結果の中間的な値を示す。正ストリーマは界面において影響を受けることなく、シリコン油中ではそれ固有のふるまいで進展し、KCl (100)内に侵入した後にはKCl (100)固有のふるまいで進展する。他方、[KCl (100) → oil] の実験においては、その破壊遅れ時間の特性はKCl (100)およびシリコン油単独での正針の特性のいずれよりも大きく、正ストリーマの平均進展はいずれよ

りも小さい。界面において、正ストリーマは強く影響を受け、KCl（100）内ではそれ固有のふるまいで進展するが界面以後のシリコン油層中での進展速度は非常に低下する。この現象は正ストリーマ先端の電界強度が界面において緩和されるとの推定から説明できる。

発 表 論 文

- (1) ns パルスによるマイカと高分子の絶縁破壊
電気学会論文誌 Vol.93-A p.313 (昭48)
- (2) 高分子絶縁フィルムの破壊遅れ時間とその温度特性
電気学会論文誌 Vol.94-A p.251 (昭49)
- (3) 不平等電界中(針対平板)におけるアルカリハライド結晶の破壊
電気学会論文誌 Vol.95-A p.165 (昭50)
- (4) 複合誘電体(液体と固体)の正ストリーマ破壊
電気学会論文誌 Vol.98-A p.359 (昭53)
- (5) Avalanche Breakdown in n-hexane
J.Phys.D:Appl.phys Vol.12 p.787 (1979)
- (6) Time Lag of Breakdown in Polyethylene
Tech.Rep.Osaka.Univ. Vol.24 p.95 (1974)
- (7) 高分子絶縁物の破壊遅れ
愛媛大学紀要 第三部 工学 Vol.8 p.107 (昭49)
- (8) Impulse Breakdown of Polymer Dielectrics in ns Range in
Divergent Field
J.J.Appl.Phys (投稿準備中)
- (9) Prebreakdown Light Emission of KCl (100) by ns Pulse with
Point-Plane Electrode System
J.J.Appl.Phys (投稿準備中)

国際学会発表

- (1) Breakdown Time Lags and Time of Flight Measurement in Liquid Dielectric

Proceeding of the 5th International Conference on
Conduction and Breakdown in Liquid (1975)

- (2) Streamer Breakdown of Dielectrics in Divergent Field
International Workshop on Electric Charge in
Dielectrics (1978)

学会報告

- (1) ns パルスによる固体の絶縁破壊

第4回電気絶縁材料シンポジウム (昭46)

- (2) 高分子絶縁材料の破壊遅れ

電気学会全国大会 (昭47)

- (3) ns パルスによる高分子の絶縁破壊 (低温領域)

第5回電気絶縁材料シンポジウム (昭47)

- (4) 高分子の破壊遅れ

電気学会全国大会 (昭48)

- (5) 高分子絶縁物の時間遅れの温度依存性

第6回電気絶縁材料シンポジウム (昭48)

- (6) 固体絶縁物の不平等電界中（針対平板）での破壊遅れ
電気学会全国大会 (昭49)
- (7) 不平等電界中での破壊遅れ時間
第7回電気絶縁材料シンポジウム (昭49)
- (8) 複合誘電体（シリコン油 + KCl ）の破壊
電気学会全国大会 (昭50)
- (9) シリコン油の短時間領域での破壊遅れ
電気学会全国大会 (昭50)
- (10) 破壊遅れ時間より推定した絶縁破壊過程（シリコン油の場合）
第8回電気絶縁材料シンポジウム (昭50)
- (11) 正ストリーマの進展にる複合誘電体（シリコン油 + 高分子フィルム）
の破壊
電気学会全国大会 (昭51)
- (12) シリコン油の短時間領域での破壊遅れ
電気学会全国大会 (昭51)
- (13) n-ヘキサンの短時間領域での破壊遅れ
電気学会全国大会 (昭51)
- (14) 正ストリーマの進展による複合誘電体の破壊
第9回電気絶縁材料シンポジウム (昭51)
- (15) 不平等電界中における高分子絶縁物の短時間破壊(I)
電気学会全国大会 (昭52)
- (16) 不平等電界中における高分子絶縁物の短時間破壊(II)
電気学会全国大会 (昭53)

(17) 炭化水素液体の正ストリーマ破壊

電気学会全国大会 (昭53)

(18) 高分子絶縁物の不平等電界中における短時間破壊

第11回電気絶縁材料シンポジウム (昭53)

(19) 針対平板電極構成における $KCl(100)$ の短時間破壊前駆光の測定

電気学会全国大会 (昭54)

(20) ナノ秒領域での n -ヘキサンの破壊機構(II)

電気学会全国大会 (昭54)

研究会発表

(1) ナノセコンドパルスによるポリマー絶縁物の破壊電界中の移動度

電気学会絶縁材料研究会資料 IM-73-31 (昭48)

(2) ナノ秒領域での液体誘電体の絶縁破壊

電気学会放電・絶縁材料合同研究会資料

ED-76-11, EIM-76-18 (昭51)

謝

辞

本論文を結ぶに当って、終始御指導、御鞭達を賜った犬石嘉雄大阪大学教授に衷心より感謝の意を表わすとともに、実験の遂行にあたって数々な有益な御教示、御助言を頂いた有井清益愛媛大学助教授に衷心から感謝の意を表わします。また本論文の作成にあたり多くの御教示を頂いた吉野勝美大阪大学助教授に深く感謝致します。

また筆者が大阪大学工学部に内地研究員として留学中に御指導頂いた木下仁志教授、西村正太郎教授、山中千代衛教授、藤井克彦教授、鈴木胖教授をはじめとする電気工学教室の教室員の方々に深く感謝致します。

また、終始御激励を頂いた有吉弘教授、磯村滋宏教授をはじめとする愛媛大学工学部電気工学教室の方々に深く感謝致します。さらに、化学的分野の問題に対して有益な御助言を頂いた工業化学教室の谷垣植一教授、酒井義郎教授、定岡芳彦助手に深く感謝の意を表わします。

さらに有益な種々の御討論を頂いた白藤純嗣助教授、金藤敬一助手をはじめとする犬石研究室の諸兄に感謝の意を表わします。

