



固体绝缘介质中的空间电荷效应及应用

张治文¹, 潘佳萍¹, 雷清泉², 郑飞虎^{1*}

1. 同济大学电子与信息工程学院, 上海 201804;

2. 哈尔滨理工大学电介质工程重点实验室, 哈尔滨 150080

* 联系人, E-mail: feihuzheng@tongji.edu.cn

2021-04-01 收稿, 2021-06-29 修回, 2021-07-01 接受, 2021-07-02 网络版发表

国家自然科学基金(51877153)资助

摘要 本文从测量、危害、抑制方法、应用、仿真等研究角度出发, 概括介绍了固体绝缘介质中空间电荷研究的发展历史及进展。目前广泛使用的测量空间电荷分布的技术大体上分为声学效应方法和热学效应方法, 这两类方法的空间分辨率和应用范围均有所差异。对于空间电荷能量陷阱的分布测量, 目前还缺乏切实可靠的方法与技术, 常用的热刺激放电电流法和光刺激放电电流法的结果无法进行对比。近年来出现了压激电流法的研究, 但这一方法仍在试验中。针对空间电荷引起的电场畸变和放电破坏等危害, 已出现了诸如绝缘介质表面改性、原料添加剂改性等多种有效的方法。电介质中空间电荷的存在有弊也有利。空间电荷效应最主要的应用是驻极体材料的应用, 关于驻极体的制备方法、电荷特性以及应用均有大量的研究。对空间电荷的仿真研究可分为空间电荷行为的物理模型研究和实验测量数据的处理, 其发展相对其他研究领域较为落后。

关键词 空间电荷测量, 空间电荷抑制, 陷阱能级, 驻极体

固体绝缘介质中的空间电荷问题是一个由来已久的问题。在20世纪70年代, 高分子聚合物绝缘材料在电气工程领域中得到广泛应用的初期, 研究人员就注意到在直流电场作用下聚乙烯中存在空间电荷积累, 会引起明显的绝缘性能改变^[1]。但是由于缺乏有效的测量方法与技术手段, 早期的研究只能间接地推测空间电荷的作用。20世纪80年代末到90年代初, 研究人员对固体绝缘介质中空间电荷分布的测量方法进行了各种尝试与研究, 曾经一度出现了数十种空间电荷分布的测量方法^[2-6]。继续深入的研究表明, 其中某些方法的原理在本质上是相同的, 只是在具体的实验实现技术上有所区别。目前, 空间电荷分布的测量技术大体上分为两大类: 利用声学效应的方法与利用热学效应的方

法。前者又分为利用外加声脉冲检测电信号的压力波法(pressure wave propagation, PWP)^[7-11]与利用外加高压电脉冲产生声脉冲, 再通过电声传感器检测电信号的电声脉冲法(pulsed electro-acoustic, PEA)^[12,13]。后者也可再细分为热脉冲法(thermal pulse method, TPM)^[4]、激光光强调制法(laser intensity modulation method, L IMM)^[14]与热阶跃法(thermal step method, TSM)^[15]。适用的空间电荷分布测量方法问世后, 固体绝缘介质中的空间电荷一度成为研究热点, 甚至形成了“space charge crazy”现象^[16], 将一些绝缘失效的问题都归结于空间电荷诱发产生。目前, 空间电荷的测量技术还存在一些待改进之处, 它的测量空间分辨率不足, 测量的时间响应不够快, 而且无法用于实际运行的电

引用格式: 张治文, 潘佳萍, 雷清泉, 等. 固体绝缘介质中的空间电荷效应及应用. 科学通报, 2021, 66: 3695-3711

Zhang Y W, Pan J P, Lei Q Q, et al. Space charge effect and application in solid insulation dielectrics (in Chinese). Chin Sci Bull, 2021, 66: 3695-3711, doi: 10.1360/TB-2021-0318

气设备中。

测量与研究电荷陷阱的深度与密度分布是固体绝缘介质中空间电荷研究的另一个难点问题,至今仍然缺乏有效可信的方法。目前,常用的测量方法基本局限于热刺激放电电流法^[17,18](thermal stimulated discharge current, TSDC或者thermal stimulated current, TSC)与光刺激放电电流法(photo stimulated discharge, PSD)^[19,20]。但是这两种方法均有一定的问题,而且所得到的陷阱参数无法相互比较。目前,有学者开始研究用压激电流法(piezo-stimulated current, PieSC)测量固体绝缘介质中的空间电荷陷阱^[21],但目前还没有得到实际的应用。

空间电荷效应与其陷阱分布之间的关系同样存在着许多值得研究的基础问题。空间电荷的主要来源是电极注入和内部杂质解离。电极注入的电荷及杂质分子解离产生的电荷等被介质中的陷阱捕获会形成空间电荷的积累,从而形成稳定的空间电荷分布。绝缘介质中的空间电荷效应最直接的影响是它会严重影响直流高压下绝缘内部的电场分布,从而引起严重的电场畸变^[22]。随着空间电荷研究的深入进行,人们也陆续发现了空间电荷效应不仅直接影响电场,它的存在本身也会导致放电破坏^[23]。对于实际应用中的电气设备,例如高压直流电缆与储能电容器,以及目前的换流变滤波电容器(它有很强烈的直流分量),空间电荷效应对其性能与运行寿命有严重的影响。对于航天设备,由空间辐射诱发的空间电荷积累同样会引起绝缘介质的破坏,例如太阳能电池极板的空间电荷损伤^[24]。因此,目前已出现了大量的研究,致力于减少绝缘介质中的空间电荷,抑制电荷注入或者减少电荷在介质内部的迁移积累^[25~33]。

固体绝缘介质中的空间电荷效应并非只有破坏作用。对于一类功能电介质——驻极体,空间电荷是其特性的基本要素^[34]。对于驻极体,空间电荷的分布需要稳定持久,即内部准稳态的空间电荷分布不随时间变化,不对温度敏感。实际上,固体绝缘介质中的空间电荷性质主要由电荷陷阱的深度、电荷陷阱的密度以及电荷捕获截面决定,抑制空间电荷积累很不容易,维持稳定不变的空间电荷也同样不容易。

相对于其他学科或者领域,空间电荷研究中仿真方法的应用较为落后,目前还没有实现空间电荷行为的仿真模拟,基本上仍然是实验科学。但是在测量数据的处理与相关信息的提取方面,数值仿真有重要的作用^[35~37]。

1 空间电荷分布的测量方法和技术

1.1 声学效应方法

压力波法与电声脉冲法都是基于介质中的声-电/电-声效应,测量固体绝缘电介质中电场分布与空间电荷分布。虽然它们的技术路线与基本原理并不相同,但因为二者都是基于声学效应,而且在物理机制上这两种方法互为逆过程,因此也可以归纳为同一大类。这是测量固体绝缘电介质中电荷分布的两种成熟方法。针对平板试样的测试,已经分别有IEC/TS 62836标准^[38]和IEC/TS 62758标准^[35],也分别制定了国内行业标准JB/T 12927-2016^[39]和JB/T 12928-2016^[40]。

压力波法的基本原理是利用压力脉冲对试样进行扰动,引起电荷发生微小位移,电荷位移导致电极上感应电荷的变化,引起测量线路上电流的变化,从而获得介质中电荷分布的信息。这个过程的理论表达式为^[41]

$$i_m(t) = -C_0\chi(1+A)\int\left[E(x,t)\frac{\partial p(x,t)}{\partial t}\right]dx, \quad (1)$$

其中, $i_m(t)$ 为试样在压力脉冲作用下所产生的外部短路电流, C_0 为样品的电容量, χ 为材料的压缩模量, A 为与介质的介电系数相关的常数, $E(x,t)$ 为在 t 时刻试样内 x 处的电场分布, $p(x,t)$ 为在试样中传播的压力脉冲。对于压力脉冲的产生方法,历史上曾有过多种尝试手段,目前通常用大功率脉冲激光器或压电器件产生纳秒级的压力脉冲,如图1所示。当压力脉冲为窄脉冲时,PWP法的测量信号基本正比于试样中的电荷分布^[41],因此可以对原始的测量信号直接分析讨论而不需要进行复杂的数据处理。对于同轴结构的电缆,在没有空间电荷分布时,其内部电场是不均匀的,PWP法的测量信号理论表达式为^[42]

$$i_m(t) = -C_0\chi\left\{(1+A)\int\left[E(r,t)\frac{\partial p(r,t)}{\partial t}\right]dr - 2v\int\frac{E(r,t)}{r}p(r,t)dr\right\}, \quad (2)$$

其中, $i_m(t)$ 为测量电流信号, $E(r,t)$ 表示在 t 时刻同轴试样内 r 处的电场分布, $p(r,t)$ 是以速度 v 传播的压力脉冲, C_0 为测量面积所对应的初始电容, χ 为介质的压缩模量, A 为与介质的介电系数相关的常数。式(2)中的第一项与前面的平板试样表达式相同,第二项为同轴结构中不均匀电场与不均匀声波传播的贡献。对于直径较大的

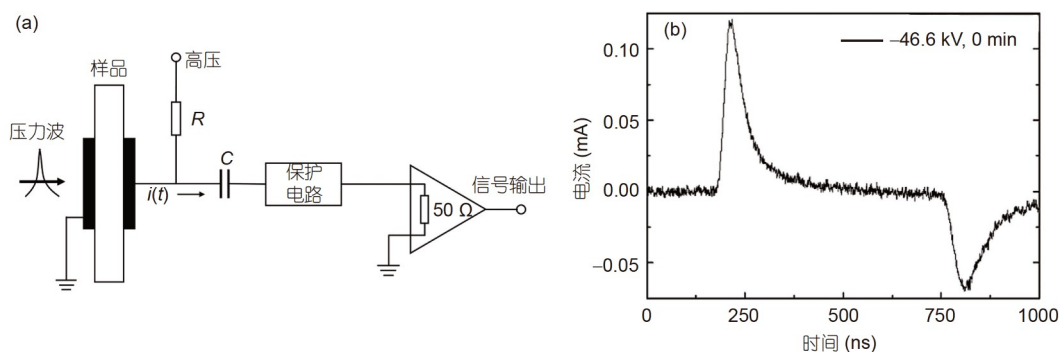


图1 PWP法测量系统及测量信号^[40]. (a) PWP法测量系统; (b) 无空间电荷时的PWP法测量信号

Figure 1 Measuring system and signal of the PWP method^[40]. (a) Measuring system of the PWP method; (b) signal of the PWP method without space charges

高压电力电缆, 此项的作用可以近似忽略不计.

电声脉冲法的基本原理是利用电脉冲扰动试样内的电荷, 带动其附着的介质产生微小位移, 介质的微小位移以超声波形式传到压电传感器, 转为电压信号, 从而获得电荷分布的信息. 这个过程的理论表达式为^[35]

$$V_{\text{PVD}} = g_{33} d \int_0^b \left(\rho E + p \frac{\partial E}{\partial z} - \frac{1}{2} E^2 \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} + \frac{1}{2} \frac{\partial (A \varepsilon E^2)}{\partial z} \right) dz, \quad (3)$$

其中, V_{PVD} 为压电传感膜的电势差, g_{33} 为压电应力常数, d 为传感膜的厚度, b 为试样厚度, A 为与材料性质有关的量(与式(1)、(2)中的 A 不同的物理量), ρ 为空间电荷密度, E 为试样内电场强度, p 为剖面压强, ε 为介电常数.

这两种方法的空间分辨率十分接近, 常见的约为 $10 \mu\text{m}$. 这两种方法是目前实验室和工业中最常用的两种测量空间电荷分布的方法. 尽管如此, 这两种方法的测试技术有明显差异. 传统的PWP法中, 试样响应信号的测试回路与高压回路处于样品同侧, 测试回路及相关仪器存在被击穿的危险^[43], 同时, 由于测试回路与高压回路仅通过隔直电容隔离, 试样及高压线路的局部放电或电晕将通过隔直电容耦合进入测试信号, 降低信号信噪比. 这个问题在利用传统PWP法测试真实高压电缆中的空间电荷分布时更加突出. 为解决这个问题, 近年来出现了一种基于外屏蔽层取信号的PWP法测量技术, 这种改进的技术使压力波的扰动与信号的探测处于同侧, 并通过电缆绝缘层与高压隔离, 保证了测量人员和测试仪器的安全. 这种新型技术可以利用激光脉冲作为压力波扰动源, 适用于变温实验环境, 也适用于极高电压远距离扰动测试的情况. 目前已应用

到数百千伏高压直流真实电缆中电荷分布的在线检测中^[44]. 该技术也可通过压电薄膜实现压力波扰动, 目前已成功研制压力波扰动和响应信号探测复合的可移动式探头, 可应用于薄片试样和电缆中的空间电荷测试^[45]. 如果利用皮秒或飞秒激光脉冲激励产生的压力脉冲, 传统PWP法可以实现微米或亚微米量级的空间分辨率^[46], 但由于激光脉冲激励瞬时的高功率脉冲极易造成靶电极的破坏, 且皮秒或飞秒激光设备价格昂贵, 因此实用性较差.

不同于传统的PWP法, PEA法的测试回路通过接地电极与高压回路隔离, 安全性大大提高, 这可能是目前PEA法较PWP法使用更广泛的原因. PEA法中的响应信号可通过电流或电压的测量获得. 电压信号需要高输入阻抗放大器进行采集, 然而满足测量条件的高输入阻抗放大器通常难以获得, 因而PEA法经常采用低输入阻抗放大器采集电流信号. 当采集电流信号时, 原始的信号波形存在明显的过冲(图2). 电流信号的过冲需要采用特定的办法进行校正^[35,39]. 目前, PEA法已经实现对平板试样三维的空间电荷分布测量^[47]和基于高频窄脉冲发生器在周期电场作用下对平板试样电荷分布的测量^[48,49]. 在对薄膜的测试方面, PEA法的空间分辨率主要取决于压电膜的厚度和输入电脉冲的宽度, 利用厚度仅为 $1 \mu\text{m}$ 的超薄压电薄膜并配合 0.6 ns 的超窄脉冲可获得约 $1.6 \mu\text{m}$ 的空间分辨率^[50]. 通过电脉冲作用在电缆的测量段, 实现了对高压电缆测量段范围内平均空间电荷分布的PEA法测量. 激光PWP法直接采集压力波扰动试样激发的响应信号, 避免了PEA法压电传感器在高温实验环境的信号耦合甚至退极化导致的测量偏差, 从这方面考虑, 激光PWP法更具有技术优势.

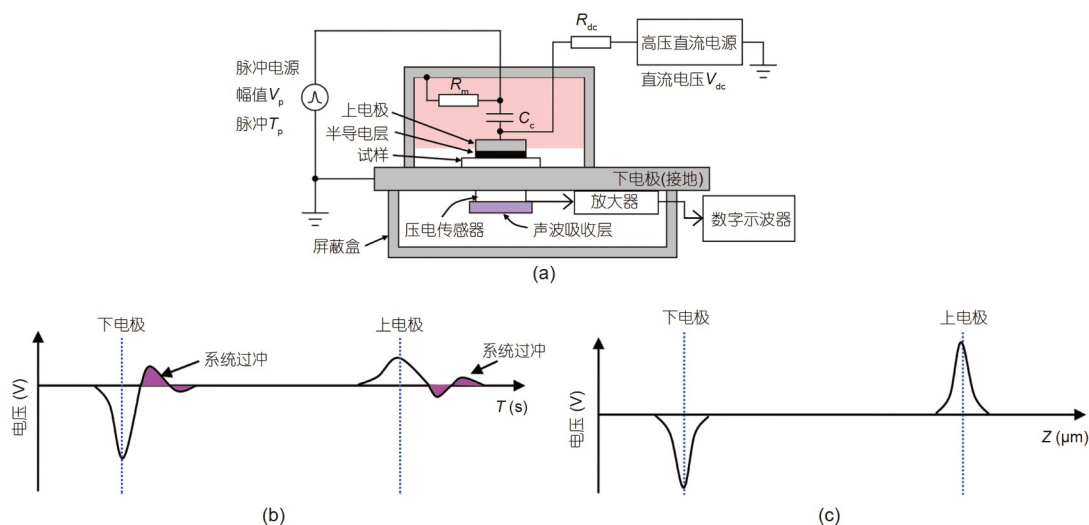


图2 PEA法测量系统及测量信号^[39]. (a) PEA法测量系统; (b) PEA法原始信号; (c) 校正完成的信号

Figure 2 Measuring system and signal of the PEA method^[39]. (a) Measuring system of the PEA method; (b) original signal of the PEA method; (c) corrected signal

电声反射法(electro-acoustic reflection, EAR)^[51]是新近提出的基于声学效应的空间电荷分布测试方法. 其基本原理是, 利用网络分析仪产生的激励信号作用于试样上进行扫频, 只有与试样中空间电荷相互作用产生谐振的频段被吸收, 通过傅里叶逆变换获取反射信号在时域的波形特征, 从而分析获得试样中空间电荷分布信息. 其空间分辨率可达1 μm , 适用于贴片式微小结构电介质中电荷分布的测量, 在一定程度上弥补了PWP和PEA法在测量横向尺寸较小样品时的困难. EAR法的主要缺点是设备昂贵, 不能在测试时对样品施加电压, 目前还处于实验室研究提升和改进阶段.

1.2 热学效应方法

基于热学效应方法的扰动有3种基本形式: 热脉冲、周期性热扰动和热阶跃. 对应发展为3种基本测量方法: 热脉冲法^[37]、激光光强调制法^[14]和热阶跃法^[52]. 这3种测量方法的基本原理可概括为, 热量的传导在试样内形成温度梯度分布引发位移电流, 分析位移电流信息可获得试样内的电荷分布. 区别于基于声学效应的测量方法, 只要热扰动还未在试样内达到热平衡, 试样中存在温度增量的位置都对位移电流有贡献. 这导致检测到的电信号和电荷分布不是简单的时-空对应关系, 而获取电荷分布的方式是通过求解第一类Fredholm方程. 3种方法的基本原理可以统一表示为^[53]

$$i(t) = -\alpha D \frac{(1-a/\varepsilon)A}{d} \int_0^d \varepsilon E(x) \frac{\partial^2 \Delta T(x,t)}{\partial x^2} dx, \quad (4)$$

其中, $i(t)$ 为试样在热脉冲作用下所产生的外部短路电流, α 为线性膨胀系数, a 为电致伸缩系数, A 为热脉冲作用面积, $E(x)$ 为试样内的电场分布, $\Delta T(x,t)$ 为试样内温度增量, d 为试样厚度, D 为试样的热扩散系数. 热脉冲法的测量系统及信号如图3所示^[54].

TSM^[52]的一个技术难点是如何实现对试样的阶跃扰动, 瞬时的热源或冷源通过热交换器作用在试样上的阶跃宽度取决于热交换器的热扩散系数、厚度、形状等, 难以实现陡峭的热阶跃边缘. 而相对缓慢的温度斜坡意味着长时间温度扰动, 不利于对试样进行高分辨率的测量. 考虑到测量精度, 热阶跃法可用于对空间分辨率要求不是特别高的同轴电缆中空间电荷分布的测量. 近年来, TSM虽然在热扩散器及算法的处理上有些进步, 但距离实际应用仍有不小的差距.

考虑不同测量方法在技术原理上的巨大差异, 为确认方法的可靠性, 往往对同一样品采用不同测量方法进行比较. 基于声学效应的两种测量方法, PWP法和PEA法是原理上互逆的两种测量方法, 基于纳秒电脉冲驱动压电膜的piezo-PWP法和采用上述的电脉冲扰动样品并采用相同的压电薄膜作为压力脉冲传感器的PEA法, 对同一样品空间电荷分布的测量结果出现了高度的一致性^[43]. 声效应测量方法和热效应测量方法

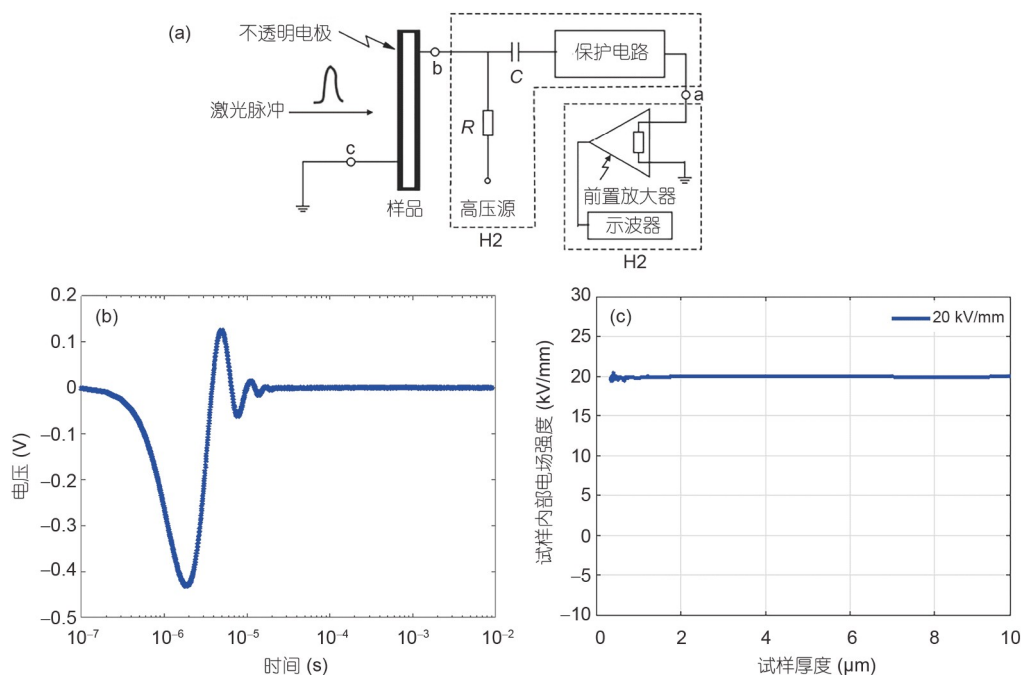


图3 TPM测量系统及测量信号^[54]. (a) TPM测量系统; (b) 不含空间电荷试样的典型原始信号; (c) 反卷积处理后获得的电场分布

Figure 3 Measuring system and signal of the TPM^[54]. (a) Measuring system of the TPM; (b) typical original signal of the sample without space charges; (c) electric field distribution after deconvolution processing

也能获得类似的空间电荷分布, 例如在热脉冲法和激光压力波法(laser induced pressure pulse, LIPP)的比较测试中发现, 由于测试方法的特性, TPM在样品表层具有高分辨率, LIPP法则在全厚度范围具有类似的空间分辨率, 测试结果表现出一定的差异性^[55,56]. 在灵敏度方面, 基于热效应的测量方法求解涉及病态性, 多种求解方法都表现出对干扰噪声强烈的敏感性, 因此基于热效应的测量方法灵敏度整体低于基于声效应的测量方法.

基于现有的技术, 对于厚样品如数毫米厚片, 同轴电缆等空间电荷分布的测量主要依赖于高幅值的扰动源. 主流方法(如压力波法和电声脉冲法)对于数十微米至数毫米厚度的平板样品, 空间分辨率约为10 μm ; 对于同轴高压电缆中空间电荷分布的测量, 这种情况下需要平衡幅值和脉冲宽度, 通常不需要特别窄的扰动脉冲, 对应的空间分辨率基本为几十微米以上. 对于薄膜样品特别是微米级厚度样品, 需要使用更窄的扰动脉冲以提高空间分辨率. 例如, 利用皮秒激光的压力波法, 由于需要经过烧蚀过程转变为压力脉冲, 它的压力脉冲会变宽, 因而其空间分辨率约为1 μm ^[9]. 利用亚纳秒电脉冲发生器, 配合超薄压电传感器的电声脉冲法, 目前能够达到的最高分辨率略大于1 μm ^[50]. 对于电声

脉冲法, 需要有更窄的电脉冲发生器和超薄的压电传感器才能获得更高的空间分辨率. 基于声学效应的测量技术, 其空间分辨率正比于试样内压力脉冲半峰宽与声速的乘积, 由于窄脉冲的难以获得和相对较大的声速, PWP和PEA法的分辨率难以满足微米级厚度样品中空间电荷分布的测量, 更适用于对毫米级至厘米级厚度样品的测量. 相比而言, 基于热效应的测量方法由于热扩散速度相对于介质中的声速要小得多, 对样品瞬时的扰动范围远小于声学效应方法, 可较为容易实现高空间分辨率测量. 例如, 采用纳秒级脉冲激光, PWP法的分辨率约为10 μm , 而热脉冲法分辨率在理论上可达0.1 μm ^[57]. 但是在实际的测量中, 由于受到诸多技术因素如数据处理方法等的影响, 还难以达到理论分辨率的极限值. 目前已经达到的近电极表面处, 最高空间分辨率在亚微米量级. 需要注意的是, 热脉冲在试样内传导时, 脉冲宽度在试样深度方向迅速展宽, 空间分辨率也随之急速下降, 因此TPM只适用于薄膜电介质中空间电荷分布的高分辨率测量^[58]. 其实验设备除了常见的纳秒脉冲激光和数百kHz带宽的前置电流放大器外, 并无对其他高级设备仪器的需求. 因此, 整体而言, TPM是一种具有很高性价比的适用于微米级薄膜高分辨率的空间电荷分布测量方法. LImm是通过频

率和幅值可调的连续激光对试样进行扫频激励, TPM在频域上与LIMM有相同的理论表达, 所以两种方法具有类似的空间分辨率^[59]. TPM和LIMM都已实现1D和3D的测量^[60]. 所不同的是, TPM为时域测量, 为提高数据信噪比需要进行数十次的平均测量, 通常在30 s内可以完成一组数据的测量, 而LIMM是扫频测量, 同时每个频点又需要多次平均, 测试获得一组数据往往需要30 min以上, 因此只适合稳态电荷分布的测量. 从整体上看, TPM相比LIMM更适用于微米薄膜中空间电荷分布的实时测量.

1.3 电子注入法

前文介绍的两大类测量方法都是电、热或机械对试样内的空间电荷作局部微小扰动, 并不改变电荷在试样内的实际位置, 也不会对试样造成破坏. 而电子注入法则是通过电子能量可以被精确控制的电子束, 对被测试样由浅至深进行辐照, 被注入电子撞击的电荷脱陷形成电流, 由此可获知对应深度的电荷密度分布. 电子注入法的测量过程不仅会造成辐照区域试样的损坏, 也可能由于电子束及注入电荷的电场作用, 导致被测试样内电荷的重新分布, 有损测量的精度. 另一方面, 电子注入过程也会对试样造成热效应, 温度上升也可能导致电荷的脱陷, 形成的电流与直接作用导致脱陷而形成的电流叠加, 不利于数据的分析. 电子注入法是非破坏性方法被提出之前采用的研究电荷分布的方法, 但由于上述众多缺点, 目前已经很少被使用.

2 空间电荷的陷阱能量分布的方法与技术

绝缘电介质中空间电荷的物理特征参数, 除了空间电荷的空间分布之外, 主要还有电荷陷阱的能量分布. 空间电荷的陷阱能量并不能由单一物理参数简单描述, 而是由陷阱深度、陷阱密度、电荷捕获截面3个参数所描述. 陷阱深度即电荷的陷阱能量深度, 描述了电荷脱陷所需要的能量; 陷阱密度(不同于空间电荷密度)描述了空间电荷可能的数量; 电荷捕获截面表示电荷入陷的可能性. 进一步深入分析可知, 这些物理参数在介质中并不一定均匀分布, 而是有一定的空间分布关系. 但是目前的测量技术还无法达到测量这些参数的空间分布的水平, 所以通常将介质试样中的这些参数作为整体参数进行考虑, 即假设这些参数在介质中是均匀分布的.

即使在这样的简化条件下, 测量介质中的陷阱能

量分布依然比较困难. 目前还没有切实可信的技术能够准确定量地测量介质中的陷阱能量分布, 只能在有限的范围内进行相互比较. 常用的等温衰减法可分为等温电流衰减法^[61](isothermal discharge current, IDC)和等温表面电位衰减法^[62](isothermal surface potential decay, ISPD), 其所得的结果能够较好地反映电荷陷阱的特性, 但是需要较长的实验测量时间. 尤其对于含较深电荷陷阱的介质, 往往需要长达数十天的测量时间, 因此该方法更适用于浅陷阱的研究. 除此之外, 目前较为常用的方法有热刺激放电电流法、光刺激放电电流法和在试探研究中的压激电流法.

2.1 热刺激放电电流法

热刺激放电电流法的基本思路是在较高的温度下对介质试样施加电场, 在维持外加电场的情况下降低温度, 将介质中的极化“冻结”, 然后开始以较慢的速度线性升温(大约在每分钟几摄氏度的量级范围), 同时测量介质试样的放电电流. 随着温度的缓慢上升, “冻结”住的极化在相应的温度下会逐渐释放恢复, 因此它的放电电流能够反映介质的极化松弛恢复与温度的关系, 相应地与活化能有关^[18], 这种方法最初被称为热刺激去极化电流法. 对于单一松弛时间 τ_0 的极性介质, 它的热刺激去极化电流 $i(T)$ 解析式可以表示为^[63]

$$i(T) = p_0(T_0) \frac{1}{\tau_0} e^{-H/(kT)} \exp\left(-\frac{1}{\beta\tau_0} \int_{T_0}^T e^{-H/(kT)} dT\right), \quad (5)$$

其中, T_0 为去极化开始时的温度, β 为升温速度, $T=T_0+\beta t$ 为温度, t 为时间, $p_0(T_0)$ 为去极化开始时介质的极化强度, H 为偶极子活化能, k 为玻耳兹曼常数. 图4为热刺激去极化电流的典型测量信号^[18].

对于后文将要提到的驻极体材料, 它的表面不适宜有导电电极, 因此经常用开路热刺激放电法测量在线性升温情况下的表面电位变化, 从而得到电荷的陷阱信息. 这种方法常被称为TSD法, 由于实验方法及结果与TSC法相似, 经常也被称为开路热刺激电流法. 准确地说, 这种表达是错误的, 因为“开路电流”不可能存在. 与这种测量表面电位的方法对应, 前文中测量电流的TSDC法有时也被称为短路TSC法.

持续深入的研究表明, 热刺激电流法对研究极性介质的性质, 分析高分子介质的分子运动、链段运动和结晶过程都是非常有效的. 对于非极性介质, 从空间电荷的TSC电流谱中提取得到的空间电荷陷阱参数在

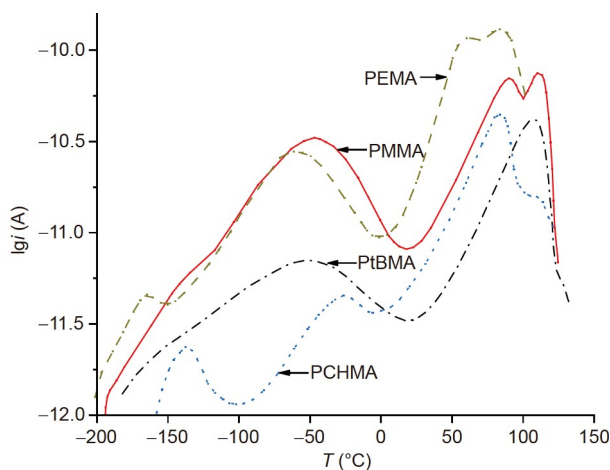


图4 典型热刺激电流谱

Figure 4 Typical thermal stimulated discharge current spectrums

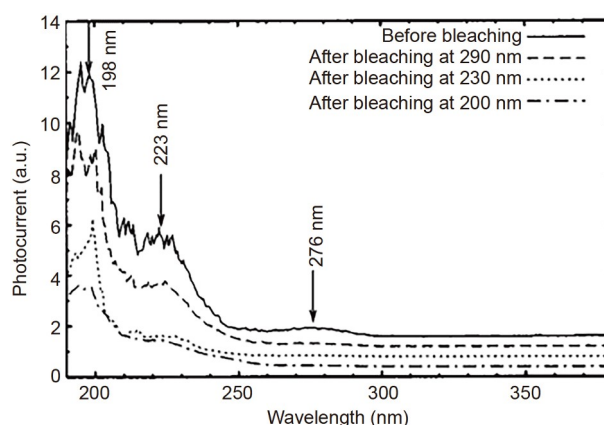
一定程度上可以反映空间电荷陷阱的情况,也得到了应用,尤其可以用于相似材料之间的相互比较.对于非极性介质,如聚乙烯, TSC法测量得到的陷阱能量约为0.92 eV^[64]. 更高的陷阱能量对应于介质的熔融状态,在较高温度下介质会发生改变甚至破坏,因此TSC法不能测量较深的陷阱,不能准确反映非极性介质的空间电荷陷阱深度.

2.2 光刺激放电电流法

另一种方法是利用不同波长的单色光扫描激发出入陷电荷形成电流,测量电流与照射光波长的关系,从而得到电荷陷阱的能量深度分布,称为光刺激放电电流法^[19]. 图5为光刺激放电电流法的典型测量信号^[65]. 这种方法的扫描波长通常从红外(3000 nm)到紫外(200 nm),对应的光电子能量范围为0.4~6.2 eV. 如果分别用TSC和PSD法对相同的样品进行空间电荷陷阱分布测量,所得到的结果完全无法对比,这个问题目前还没有得到可信的解释. 光刺激电流的测量容易受到很多其他因素的干扰,例如电极的光电效应、介质的光吸收、电极材料的透光性、光源的光谱强度均匀性与一致性等因素,都会严重影响PSD法的测量结果. 这导致对光刺激电流法的测量结果分析有事实上的难度,因此光刺激电流法也并非理想的研究空间电荷陷阱的实验技术.

2.3 压激电流法

考虑到目前仍然缺乏有效的测量陷阱能量分布的方法,近年来有研究者尝试研究压激电流法,即用线性

图5 典型光刺激放电电流谱^[65]Figure 5 Typical photo stimulated discharge current spectrums^[65]

升压或者线性降压诱发介质中的空间电荷释放形成电流,从而得到空间电荷的陷阱信息. 外加在试样上的压强范围最高大约为500 MPa. 从宏观固体物理的角度看,升高压力等效于降低温度,因此从高压线性降压的过程可以等效于TSC法的从低温线性升温的过程. 在高压下测量微弱电流对实验设备与实验技术都有很高的要求,曾经有学者用PieSC法研究测量极性介质的极化弛豫时间^[21],但目前还没有准确测量空间电荷陷阱的成功报道.

2.4 结合空间电荷分布的测量方法

除上述几种测量方法外,利用任何一种空间电荷分布的测量方法,如PWP、PEA或TPM等,只要将电荷分布的测量与电荷的时间特性相结合,就能利用电荷总量随时间的衰减推算出陷阱的能级深度,对电荷的陷阱特性进行研究^[66]. 目前已有研究通过PEA法研究LDPE内部空间电荷在短路条件下随时间的衰减过程,由此推算出介质内部的两个陷阱能级深度分别为0.1和1.1 eV^[67]. 也有研究通过PEA法研究LDPE内部陷阱能级深度与二氧化硅纳米粉末填充比例的关系^[68].

3 空间电荷效应的危害与抑制方法

在超远距离输电领域,直流高压输电具有更为明显的优势. 与交流输电相比,直流高压输电占用空间小,工程造价低,经济性能优异,节能效果好. 此外,直流线路在正常工作时可以稳定输出,出现故障时还能及时进行援助维修,系统的运行更具有稳定性^[69]. 尽管有这些优势,但相对于交流高压情况,绝缘层在直流高压下更容易积累空间电荷,因此提高直流高压输电系

统的绝缘性能也成为重要的研究课题^[70]。从静态角度看,空间电荷效应是指电荷停留在其被陷阱捕获的位置,形成稳定或接近稳定的空间电荷分布。介质内稳定的电荷分布可以形成一类功能电介质驻极体;空间电荷效应也会引起局部电场的畸变甚至造成电场分布的反转,导致绝缘材料的短路树枝化甚至击穿。图6为在外加电场作用下电缆样品内空间电荷积聚使其界面及内部电场发生畸变并导致绝缘破坏的实例^[22]。从动态角度看,空间电荷的反复脱陷入陷会造成能量的储存与释放,最终导致宏观上绝缘材料的损伤与破坏^[23]。因此,抑制聚合物内部的空间电荷成为提高材料绝缘性能的重要目标之一。

3.1 高压电力电缆

高压电力电缆是直流高压输电系统最重要的组成部分。按照绝缘层材料性质,固体绝缘电缆可分为油纸

绝缘电缆、塑料绝缘电缆和橡胶绝缘电缆。随着社会的发展,人们对电力电缆的性能要求不断提高,塑料绝缘电缆与橡胶绝缘电缆逐渐取代油纸绝缘电缆,其中,交联聚乙烯作为电缆的绝缘材料,得到了广泛的推广应用。

一般情况下,聚合物中积累的空间电荷主要来源是被陷阱捕获的注入载流子。聚合物内捕获载流子的电荷陷阱主要有物理陷阱和化学陷阱两大类。物理陷阱主要来源于晶区与非晶区界面处存在的界面陷阱;化学陷阱主要由高分子主链上的侧链、制备过程中的化学产物以及电老化降解生成的小分子产物等形成。在外加电场作用下,电极注入的载流子被这些陷阱捕获便会成为积累的空间电荷。阻挡及抑制电荷的注入能有效地解决聚合物中的空间电荷问题。

目前国内外学者从绝缘材料改性和表面处理等方面入手,已得到了多种抑制空间电荷积累的方法。添加

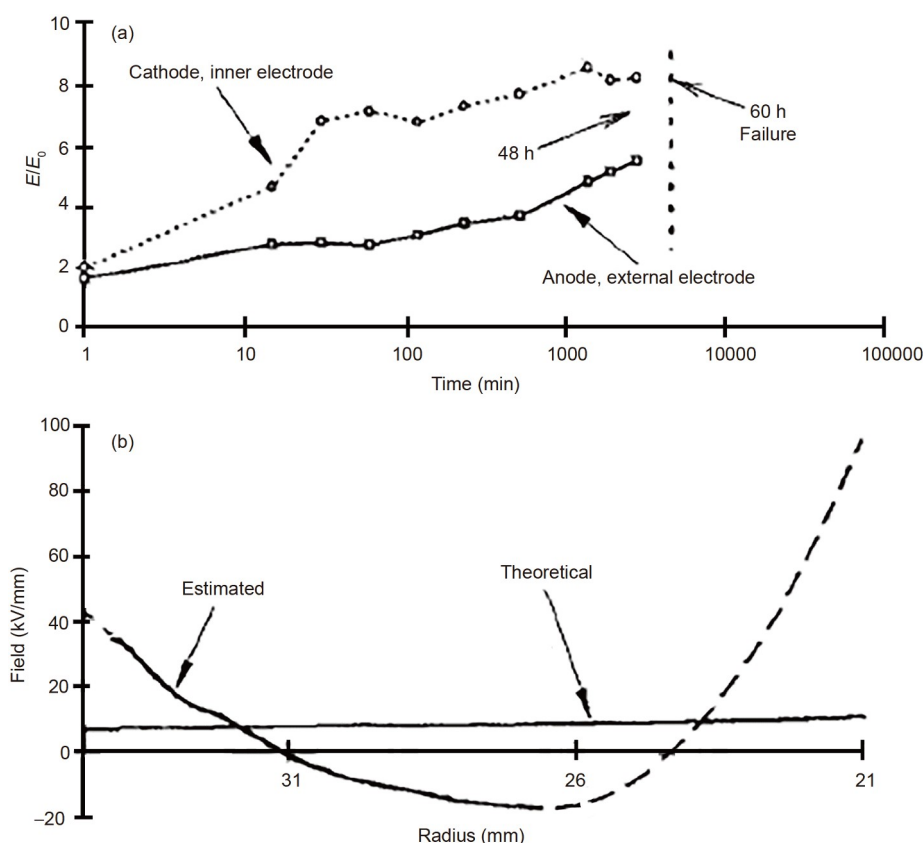


图6 持续加压下XLPE电缆样品的界面及内部电场^[22]。(a)持续加压下样品界面电场分布(在60 h后发生击穿);(b)加压48 h后样品内部电场的理论值和估测值

Figure 6 The interfacial and internal electric field of a XLPE cable sample with continuous voltage application^[22]. (a) The interfacial electric field distribution of the sample with continuous voltage application (breakdown occurs after 60 h); (b) theoretical and estimated internal electric fields of the sample after being subjected to high voltage for 48 h

剂改性是一种常见的有效方法。随着纳米技术的发展, 新型纳米材料引起了众多学者的重视。与传统材料相比, 纳米复合材料具有更优良的电气强度, 其热性能^[71]和机械性能^[72]也得到了改善。诸如纳米沸石^[25]、纳米ZnO^[26]、纳米MgO^[27,28]、纳米BaSrTiO₃^[29]、纳米SiO₂^[30,31]等纳米粒子的添加均能有效减少聚合物内部的电荷注入和电场畸变。目前主流的观点认为, 添加纳米粒子抑制空间电荷注入的原理是纳米粒子能够增加绝缘内部的深陷阱数量。当电子或空穴从两侧电极处注入时会被界面处的深陷阱捕获且不易逃脱, 这些被俘获的同极性电荷通过降低界面处的电场减少了电极处电荷的注入, 达到抑制空间电荷积累的效果^[26,28,31]。纳米材料抑制空间电荷积累的效果与其在混料中的含量有关, 不同纳米材料实现最优抑制效果的质量分数并不一定相同, 同种纳米材料在不同的环境条件下实现最优抑制效果的质量分数也不相同。同时, 纳米粒子在材料中的分散性也会影响其抑制效果^[73]。确定纳米粒子掺杂的比例及其分散方法仍是一个需要不断研究的课题。此外, 研究表明, 用马来酸酐^[74]和丙烯酸单体^[75]接枝聚乙烯可以有效减少介质中的异极性空间电荷。聚合物表面氟化处理是一种常用的通过表面处理抑制空间电荷注入的方法^[32,33]。表面氟化技术可以改变聚乙烯材料的表层特性, 实现有效的电荷阻挡。对聚合物表面的氟化处理需要考虑混合反应气体中氧的影响。氧的存在会对氟化层的阻挡效果起负面作用^[76], 如果氟化气体中存在氧杂质, 则需要较长时间的氟化处理才能实现良好的电荷阻挡作用。对聚乙烯表面的等离子处理^[77]能够增大其表面极性从而抑制电荷的注入。也有研究通过在聚乙烯与电极的接触面上增加一层聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)薄膜, 成功阻挡了电极电荷的注入^[78]。

3.2 其他电气设备中的空间电荷及危害

电缆直流高压线路中的复合绝缘子和电容器等设备也存在空间电荷的问题。在直流高压作用下, 绝缘子表面及内部都会产生空间电荷的积聚。表面积聚的静电荷会导致沿面异常闪络, 而内部的空间电荷积累与外加电场相互作用会使界面电场加强, 从而引起界面性能劣化, 最终导致绝缘子的破坏。电容器绝缘内部的空间电荷积累往往与气固界面的局部放电相伴随^[79], 长期的局部放电使绝缘的劣化损伤逐步扩大, 导致整个绝缘击穿或沿面闪络。目前一般认为, 在外加电场下, 聚合物内部空间电荷被捕获积累导致电场畸变, 最

终会引起电介质的击穿。但也有研究表明, 在外加电场减弱甚至没有外加电场的情况下, 也会发生电介质的击穿^[23]。电介质中已被捕获的空间电荷的脱陷过程, 被认为是导致非电场作用下电介质击穿的原因。实验发现, 用接地针刺激已注入空间电荷的样品诱发电荷脱陷时, 会形成树枝状破坏通道^[23]。树枝化的扩展最终会导致崩溃性击穿, 造成绝缘材料的永久性破坏, 影响电力系统的稳定运行。

气体绝缘输电管线(gas insulated transmission line, GIL)是以SF₆气体或SF₆/N₂混合气体作为绝缘的一种新型输电线路。近年来, GIL线路以其结构灵活、安装简便、输送容量大等优势, 在大容量、长距离输电领域得到了日益广泛的应用。然而, GIL线路绝缘子表面的电荷积聚会使表面电场畸变, 最终造成沿面闪络。目前已认识的表面电荷积累来源有3种: 气体放电后带电粒子被绝缘子表面陷阱俘获、绝缘介质内部空间电荷迁移至表面、电极注入的电荷沿绝缘子传导至表面。对绝缘子的结构优化^[80]和表面处理^[81]能够有效调控其表面电荷的积聚现象。

4 空间电荷效应的应用

电介质中空间电荷效应的应用主要是驻极体材料。粗略地说, 驻极体是能够长期保存空间电荷(包括极化电荷与真实空间电荷)并且具有稳定的外部电场效应的一类电介质^[34]。后者为区分驻极体与铁电体的主要特性判据, 铁电体有稳定的永久极化而没有外电场效应。因此, 理想驻极体应当能够长期稳定地维持静态的空间电荷并且具备稳定的外部电场。虽然经常将驻极体与永磁体作相似类比, 但它不像铁磁介质与永磁体一样可用统一的理论进行解释, 铁电体与驻极体是用两套完全不同的理论体系进行讨论、研究、分析的。造成这种现象的一个可能原因是在磁介质中不存在磁单极, 而驻极体是分别以独立的正负电荷、永久极化为基础进行讨论的。

从形成机理上区分, 驻极体可以分为真实空间电荷型驻极体与偶极电荷型驻极体^[34], 前者由稳定的真实电荷 ρ_r 构成, 净电荷量可以不为零; 后者由不受外电场影响的准永久极化构成, 空间不均匀分布的准永久极化, 即极化的散度构成了偶极型驻极体中的偶极型空间电荷, 它的等效电荷为 ρ_p , 净电荷量为零。在一维近似的情况下, 可以写成 $\rho_p = -dP_p(x)/dx$, 其中 $P_p(x)$ 为不均匀分布的准永久极化。因此, 驻极体表现的准永久性

体总电荷为 $\rho=\rho_r+\rho_p$ 。纯粹的内部均匀分布偶极型驻极体实际上是一种比较特殊的铁电体。但通常对实际的驻极体,尤其是聚合物驻极体,往往是多种效应混合在一起,很难制备得到纯粹的偶极型驻极体。其真实空间电荷的纵向分布往往非常不均匀,存在许多近表面电荷,即真实空间电荷起主要作用,并且会影响准永久偶极电荷分布,因此铁电体的理论模型并不适用于驻极体。对于目前常见的薄膜型驻极体功能电介质,其表面与近表面的真实空间电荷通常起非常重要的作用,它往往决定了驻极体的电荷行为特性。

驻极体的制备方法关键在于电荷注入并使其在介质中能够保持长期稳定,且具有合适的空间分布,这一过程常称为“注极”^[34]。目前常用的方法是电晕注入电荷法^[82]与电子束注入法^[83],以前者较为常见。主要原因是其设备简单,容易操作控制,注极过程所需要的时间也较短,易于实现连续生产作业。电晕注极的基本原理见图7,处于空气中的针尖电极(上电极)附近的电场很高,在直流高压情况下产生局部电晕,在电场作用下产生的离子或者电子向样品快速移动。样品(通常是聚合物薄膜)在作为下电极的平板电极上方,电晕产生的离子或者电子在电场作用下具有一定的动能,能够进入样品的近表层,形成较为稳定的空间电荷层。为了控制样品的电荷注入量,可以在样品与上电极之间加上一个电位可控的栅电极,当样品表面电位达到栅极电位时,样品表面的电场为零,电荷就会停止注入。为形成性能较好的驻极体,电晕注极需要在较高的温度下进行。用这种方法形成的驻极体薄膜,其注入电荷处于近表面,因此有较明显的外电场效应。

用于制备驻极体的介质材料必须有良好的电荷存储特性,因此通常是非极性、弱极性介质^[34]。例如,聚丙烯是常见的一种驻极体材料,聚四氟乙烯、聚偏氟乙烯、聚酯也都是适用的驻极体材料。无机介质中,二氧化硅薄膜也可以用于制备驻极体^[84]。除上述均匀介质的驻极体之外,多孔介质也适用于制备驻极体功能材料,而且它还具有明显的压电效应。比较常见的是聚丙烯多孔膜,其中的孔是不连通的,孔径范围大约为0.1 mm^[85]。图8为多孔聚丙烯驻极体的断面图与形成机理的示意图^[86]。

驻极体的电荷特性研究方法,例如电荷陷阱分布测量、电荷密度分布测量与前文介绍过的方法在原理上是相同的。它的特点是需要测量研究电荷的温度稳定性以及外电场特性。出于这一特点,驻极体的电荷特

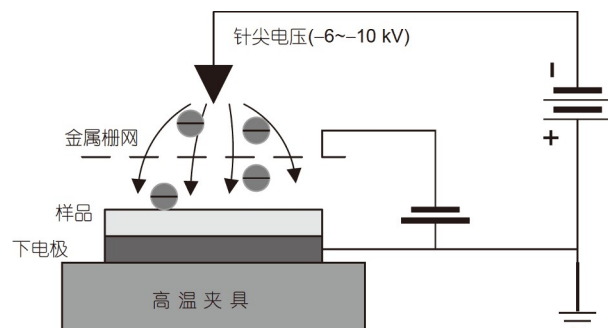


图7 电晕极化制备驻极体原理示意图

Figure 7 Schematic diagram of electrets preparation by corona polarization

性研究通常测量驻极体的表面电位而不是内部的电荷分布^[87],研究测量驻极体的表面电位稳定性是一种更为容易而且直接的测量技术。对于驻极体中的空间电荷特性,通常要求其具有较深的电荷陷阱和较高的电荷陷阱密度,期望的空间电荷分布是不均匀的且分布于近表面层的位置,以使驻极体具有较高的外电场特性(表现为表面电位)和长期稳定的电荷贮存特性。

驻极体的应用范围很广泛,传感型驻极体广泛应用于压力传感器、振动传感器、声传感器(麦克风)中^[87,88];驱动型驻极体可作为驱动器件中的关键功能材料,例如用驻极体薄膜制造的平板扬声器^[89]。由于驻极体的注极方法与目前广泛使用的集成电路工艺无法兼容,因此驻极体麦克风目前局限于作为分立元件在电子产品中使用。目前有研究尝试用驻极体作为小功率的能量捕获器,用于驱动微小功耗的器件^[90,91]。除此以外,驻极体在医学上可以作为电场诱导药物导入^[92]以及电场诱导骨生长^[93,94],驻极体也可作为空气过滤器件,由于其容量较小而主要适用于纳米级颗粒的终级过滤^[95]。驻极体材料的一个特点(或者说缺点)是它的电荷稳定性与周围的环境温度和湿度关系非常大,如果能够发展出对温度/湿度不敏感的驻极体材料,其应用范围将会有巨大的拓宽。

5 空间电荷的仿真研究

相对于其他学科与研究领域,在空间电荷研究领域中,仿真研究(包括测量数据的处理)是相对比较落后的。主要原因是空间电荷的物理模型尚未完备,还有许多不确定的影响因素,而且空间电荷的仿真研究与实验结果的吻合程度较弱,难以判断仿真结果是否可信。在不确定仿真结果是否可以作为设计依据的情况下,

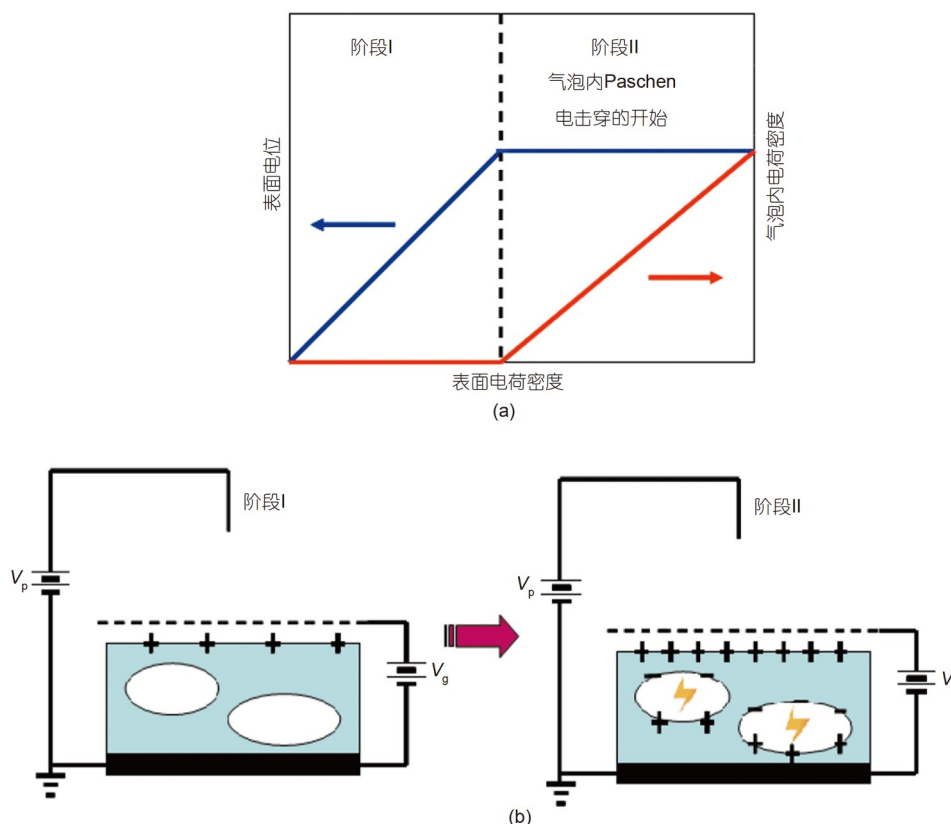


图8 多孔驻极体的形成机理示意图^[86]. (a) 电晕充电过程中薄膜的表面电位和气泡内的电荷密度; (b) 电荷在薄膜表面(阶段I)和气泡内(阶段II)的积累

Figure 8 Schematic diagram of the formation mechanism of a cellular electret^[86]. (a) Surface potential of the film and charge density in air bubbles during corona charging; (b) the accumulation of charges on the surface of the film (stage I) and within the bubbles (stage II)

仍然需要进行大量的试验, 因而仿真计算难以得到实际的应用. 目前关于空间电荷行为的仿真主要关注电荷注入、积累和运动过程^[96~98]. 例如聚乙烯中电荷包行为的解释, 目前均认同产生空间电荷包的物理机制是基于介质的负微分电荷迁移率, 仿真结果与实测结果也很接近^[97], 但还没有合适的微观模型对连续多个电荷包的行为完成仿真. 此外, 通过实验观测电荷包的整体迁移行为可获得电荷整体的视在迁移率, 但并不能反映真实的电荷迁移率, 这时需要一些特定的算法以实验参数为基础提取特征量^[36]. 双层或多层介质间的电荷行为复杂多样, 目前尚未得到统一的解释模型, 因而仿真被认为是理解界面电荷行为的有力工具, 但仿真过程中涉及的多个参数, 如电荷陷阱能级、迁移率、注入率都难以实测, 可能存在几组不同的参数组合都能仿真出相同的电荷行为, 其结果存在一定的不确定性, 因此还需要继续深入的研究.

有学者致力于从分子模拟的角度进行空间电荷的

研究. 有课题组利用分子动力学和密度泛函理论模拟计算介质中空间电荷的陷阱能级, 得出了聚合物电介质中苯环、羰基、共轭双键等化学键是空间电荷陷阱的结论, 计算获得的电荷陷阱能级与通过实验测得的结果很接近^[99,100]. 但是, 作为绝缘材料的高分子材料结构复杂, 即使是最简单的单一分子, 例如聚乙烯, 仍然具有多种层次结构, 目前无法确定哪种结构对空间电荷有主要作用. 目前的仿真计算能力还无法同时进行所有结构层次的仿真计算.

空间电荷测量数据的处理是需要重视的问题. PWP法的测量结果较为直观, 压力脉冲传播过程基本不发生衰减和色散, 激发的电流信号与试样中的空间电荷分布位置一一对应, 通常不需要进行特别的数据处理. 但是, 对于同轴结构试样, 即使不存在空间电荷分布, 绝缘层内的电场分布也是不均匀的, 不能简单依据泊松方程求解电荷分布; 另外, 同轴结构存在压力波聚焦的特点, 压力脉冲扰动从外至内增强, 要求对信号

的幅值进行修正。目前普遍使用的电声脉冲法通常使用低输入阻抗放大器而导致数据波形存在过冲, 需要结合参考波形和理论波形获得测量系统的传递函数, 再将测量数据利用传递函数进行波形恢复, 以消除波形过冲可能带来的错误判断。具体的数据恢复方法在相应的IEC标准和国内行业标准中都有详细的介绍与推荐^[35,39]。也可以利用高输入阻抗放大器克服信号过冲问题, 但这会大大增加设备成本, 因此通常很少采用。无论是平板还是同轴试样, 试样中的温度梯度都会引起声传播速度、介电系数、压缩模量、电致应变系数等不均匀分布, 因此在利用PWP法或PEA法测量有温度梯度试样中的空间电荷分布时, 必须对测量得到的信号进行校正以获得正确的电荷分布信息^[101]。对于异质双层或多层试样结构, 需要考虑不同介质的声速, 对时域信号进行校正。如果存在界面声阻抗不匹配的情况, 校正还需要考虑声波的反射及透射系数, 且由于PEA法存在过冲的情况, 因此它的校正方法要比PWP法复杂得多。

以热效应为基础的检测方法, 由于热扰动的色散导致响应电流信号与电荷存在的空间位置不是一一对应关系, 因而必须进行数据处理。TPM和LIMM处理方式类似, 都涉及第一类Fredholm方程的求解。由于它是一个病态方程, 数值解对原始数据相当敏感, 因此, 为得到解的稳定性, 又发展出若干种不同的解法, 如Tikhonov正则化法、尺度变换法、蒙特卡罗法等, 其中以Tikhonov正则化方法最为常见^[102]。在处理TSM数据时, 热源和试样之间的热扩散过程被看成是试样的等效附加厚度, 而这个等效附加厚度是经验值, 会带来人为误差。另外, 为降低求解难度, TSM将热响应电流作

有限多项傅里叶分解, 但这又会降低空间电荷分布测量的分辨率。

6 结论

对于固体绝缘介质中的空间电荷效应及应用, 这些年来已经有很多学者进行了多方面的研究。但是由于问题复杂、影响因素多样, 仍然存在许多不明确的问题, 也缺乏系统的基础理论。在这方面的研究进展虽然不是很快但一直在推进, 目前的基本状况如下。

(1) 空间电荷分布的测量技术, 目前已经在实验室与工业界(例如高压电力电缆)得到了应用, 基本上以声学基础的PWP法与PEA法为主, 二者各有技术优势, 常用的分辨率约十微米级, 最高能够达到约微米级。热学方法也正在研究中, 对于微米级薄膜的空间电荷检测, 该方法更为方便可行, 空间分辨率能达到0.1 μm 。

(2) 空间电荷陷阱能量的测量目前仍然缺乏可信的检测技术与方法, 只限于相互比较, 难以得到准确的本征物理量。

(3) 对于绝缘电介质中空间电荷的危害与抑制方法, 目前在工业界与实验室研究中都已经有了些可利用的方式, 基本上可以达到用于实际工业应用的要求。

(4) 对于驻极体材料, 需要其维持长期稳定的空间电荷分布, 虽然在各方面还有可以改进的余地, 尤其是耐高温特性方面, 但目前也已经达到了一些基本实际应用的要求, 例如驻极体话筒。

(5) 对于空间电荷的仿真研究, 同样难度很大, 其影响因素很多且不确定, 仿真的结果与实验结果的一致性较不理想, 因此还有很长的路要走。

参考文献

- 1 Bradwell A, Cooper R, Varlow B. Conduction in polythene with strong electric fields and the effect of prestressing on the electric strength. *Proc Inst Electr Eng*, 1971, 118: 247–254
- 2 Gross B, Sessler G M, West J E. Charge dynamics for electron-irradiated polymer-foil electrets. *J Appl Phys*, 1974, 45: 2841–2851
- 3 Sheng S J, Hanson D M. Spectroscopic measurement of the space-charge distribution in insulators, semiconductors, and photoconductors. *J Appl Phys*, 1974, 45: 4954–4956
- 4 Collins R E. Analysis of spatial distribution of charges and dipoles in electrets by a transient heating technique. *J Appl Phys*, 1976, 47: 4804–4808
- 5 Laurenceau P, Ball J, Dreyfus G, et al. Une méthode nouvelle de détermination de la distribution spatiale des potentiels dans les diélectriques. *C R Acad Sci*, 1976, 283: 135–138
- 6 Falck M, Dreyfus G, Lewiner J. Vapor-induced depolarization currents. I. Models. *Phys Rev B*, 1982, 25: 5499–5508
- 7 Alquié C, Dreyfus G, Lewiner J. Stress-wave probing of electric field distributions in dielectrics. *Phys Rev Lett*, 1981, 47: 1483–1487
- 8 Rozno A, Gromov V. Measurement of the space-charge distribution in a solid dielectric. *Sov Tech Phys Lett*, 1979, 5: 266–267
- 9 Sessler G M, West J E, Gerhard G. High-resolution laser-pulse method for measuring charge distributions in dielectrics. *Phys Rev Lett*, 1982, 48:

563–566

- 10 Holé S, Lewiner J. Single transducer generation of unipolar pressure waves. *Appl Phys Lett*, 1996, 69: 3167–3169
- 11 Zheng F, Zhang Y, Xia Z. A monopole ultrasonic pulse generator using PVDF piezoelectric film. In: Proceedings of the International Symposium on Electrets. Melbourne: IEEE, 2002. 330–333
- 12 Takada T, Sakai T. Measurement of electric fields at a dielectric/electrode interface using an acoustic transducer technique. *IEEE Trans Elect Insul*, 1983, EI-18: 619–628
- 13 Li Y, Yasuda M, Takada T. Pulsed electroacoustic method for measurement of charge accumulation in solid dielectrics. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 1994, 1: 188–195
- 14 Nepal N, Altafim R, Mellinger A. Space charge deposition in tubular channel ferroelectrets: A combined fluorescence imaging/LIMM study with finite element analysis. *J Appl Phys*, 2017, 121: 244103
- 15 Toureille A, Reboul J P. The thermal-step-technique applied to the study of charge decay in polyethylene thermoelectrets. In: Proceedings of the 6th International Symposium on Electrets. Oxford: IEEE, 1988. 23–27
- 16 Boggs S. A rational consideration of space charge. *IEEE Electr Insul Mag*, 2004, 20: 22–27
- 17 Bräunlich P. Thermally Stimulated Relaxation in Solids. Berlin: Springer-Verlag, 1979
- 18 Turnhout J V. Thermally stimulated discharge of polymer electrets. *Polym J*, 1970, 2: 81–215
- 19 Brodribb J D, O'Colmain D, Hughes D M. The theory of photon-stimulated current spectroscopy. *J Phys D-Appl Phys*, 1975, 8: 856–862
- 20 Brodribb J D, O'Colmain D, Hughes D M. Photon-stimulated current analysis of trap parameters in anthracene. *J Phys D-Appl Phys*, 1976, 9: 253–263
- 21 Radhakrishna S, Haridoss S. Methods of analysis of piezo-stimulated current spectra. *Phys Status Solidi A-Appl Res*, 2010, 41: 649–652
- 22 Zhang Y W, Lewiner J, Alquie C, et al. Evidence of strong correlation between space-charge buildup and breakdown in cable insulation. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 1996, 3: 778–783
- 23 Zheng F H, Zhang Y W, Gong B, et al. Characteristics of space charge in PMMA after electron beam radiatio (in Chinese). *Chin J Mater Res*, 2005, 19: 431–436 [郑飞虎, 张治文, 宫斌, 等. 电子束辐照后聚甲基丙烯酸甲酯的电荷特性. 材料研究学报, 2005, 19: 431–436]
- 24 Hegedus S S, Lin H S, Moore A R. Light-induced degradation in undoped hydrogenated amorphous silicon films studied by the surface photovoltage technique: A comparison of lifetime versus space-charge effects. *J Appl Phys*, 1988, 64: 1215–1219
- 25 Bai H, Xuan W, Zhi S, et al. Space charge suppression induced by deep traps in polyethylene/zeolite nanocomposite. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 345–348
- 26 Tian F, Lei Q, Wang X, et al. Effect of deep trapping states on space charge suppression in polyethylene/ZnO nanocomposite. *Appl Phys Lett*, 2011, 99: 142903
- 27 Hayase Y, Aoyama H, Tanaka Y, et al. Space charge formation in LDPE/MgO nano-composite thin film under ultra-high DC electric stress. In: Proceedings of the 2006 IEEE 8th International Conference on Properties & applications of Dielectric Materials. Bali Island: IEEE, 2006. 159–162
- 28 Takada T, Hayase Y, Tanaka Y, et al. Space charge trapping in electrical potential well caused by permanent and induced dipoles for LDPE/MgO nanocomposite. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2008, 15: 152–160
- 29 Fleming R, Ammala A, Casey P, et al. Conductivity and space charge in LDPE/BaSrTiO₃ nanocomposites. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2011, 18: 15–23
- 30 Huang X, Jiang P, Yi Y. Nanoparticle surface modification induced space charge suppression in linear low density polyethylene. *Appl Phys Lett*, 2009, 95: 1546–1549
- 31 Zhang L, Zhou Y, Huang M, et al. Effect of nanoparticle surface modification on charge transport characteristics in XLPE/SiO₂ nanocomposites. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2014, 21: 424–433
- 32 An Z, Yang Q, Xie C, et al. Suppression effect of surface fluorination on charge injection into linear low density polyethylene. *J Appl Phys*, 2009, 105: 13–69
- 33 An Z, Cang J, Chen X, et al. Impact of interface between polyethylene and surface fluorinated polyethylene on space charge accumulation in the layered structures. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2013, 20: 339–336
- 34 Xia Z F. Electrets (in Chinese). Beijing: Science Press, 2001 [夏钟福. 驻极体. 北京: 科学出版社, 2001]
- 35 International Electrotechnical Commission. Calibration of space charge measuring equipment based on the pulsed electro-acoustic (PEA) measurement principle. IEC/TS 62758-2012, 2012
- 36 Meng J, Zhang Y, Holé S, et al. Retrieval of charge mobility from apparent charge packet movements in LDPE thin films. *EPL*, 2017, 117: 67003
- 37 Zheng F, Huang C, An Z, et al. Space charge data analysis for thermal pulse method. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2020, 27: 1966–1972
- 38 International Electrotechnical Commission. Measurement of internal electric field in insulating materials-pressure wave propagation method. IEC/TS 62836-2020, 2020

- 39 National Profession Standard. Pulsed electro-acoustic test method for space charge measurement in solid insulating materials (in Chinese). JB/T 12927-2016, 2016 [国家行业标准. 固体绝缘材料中空间电荷分布的电声脉冲测试方法. JB/T 12927-2016, 2016]
- 40 National Profession Standard. Pressure wave propagation method of space charge measurement for solid insulating materials (in Chinese). JB/T 12928-2016, 2016 [国家行业标准. 固体绝缘材料中空间电荷分布的压力波测试方法. JB/T 12928-2016, 2016]
- 41 Laurenceau P, Dreyfus G, Lewiner J. New principle for the determination of potential distributions in dielectrics. *Phys Rev Lett*, 1977, 38: 46–49
- 42 Sun Y, Zhang Y, Holé S, et al. Pressure wave propagation method for space charge measurement in coaxial geometry. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2018, 25: 2139–2146
- 43 Zheng F H, Zhang Y W, Wu C S, et al. Piezo-PWP and PEA methods for measuring space charge in solid dielectric (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2003, 52: 1137–1142 [郑飞虎, 张冶文, 吴长顺, 等. 用于固体介质中空间电荷的压电压力波法与电声脉冲法. *物理学报*, 2003, 52: 1137–1142]
- 44 Lu J, Zhang Y, Ma P, et al. A variational PWP method for measuring space charge distributions in real EHV cables. In: *IEEE 11th International Conference on the Properties and Applications of Dielectric Materials*. Sydney: IEEE, 2015. 1023–1026
- 45 Zhang Y W, Cao Z B, Xu J X, et al. Composite probe for measuring polymer space charge distribution and its measuring method (in Chinese). PRC Patent, CN202010005447.3, 2020-05-19 [张冶文, 曹泽宾, 徐景贤, 等. 一种聚合物空间电荷分布测量用复合探头及其测量方法. 中国专利, CN202010005447.3, 2020-05-19]
- 46 Sessler G M, West J E, Gerhard R. Measurement of charge distribution in polymer electrets by a new pressure-pulse method. *Polym Bull*, 1981, 6: 109–111
- 47 Maeno T. Three-dimensional PEA charge measurement system. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2001, 8: 845–848
- 48 Thomas C, Teyssedre G, Laurent C. A new method for space charge measurements under periodic stress of arbitrary waveform by the pulsed electro-acoustic method. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2008, 15: 554–559
- 49 Wu J, Miao L, Zhou G, et al. Space charge observation under periodic stress—Part 2: Signal improvement and corresponding procedure. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2020, 27: 1195–1203
- 50 Kumaoka K, Kato T, Miyake H, et al. Development of space charge measurement system with high positional resolution using pulsed electro acoustic method. In: *Proceedings of the 2014 International Symposium on Electrical Insulating Materials (ISEIM)*. Niigata: IEEE, 2014. 389–392
- 51 Hamidouche L, Geron E, Holé S. Physical investigation of the electro-acoustic-reflectometry method for space charge measurements. *Phys Scr*, 2019, 94: 115006
- 52 Castellon J, Agnel S, Notinger P. Review of space charge measurements in high voltage DC extruded cables by the thermal step method. *IEEE Electr Insul Mag*, 2017, 33: 34–41
- 53 Holé S. Resolution of direct space charge distribution measurement methods. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2008, 15: 861–871
- 54 Zheng F, Liu C, Lin C, et al. Thermal pulse measurements of space charge distributions under an applied electric field in thin films. *Meas Sci Technol*, 2013, 24: 065603
- 55 Bloß P, DeReggi A S, Yang G M, et al. Thermal and acoustic pulse studies of space-charge profiles in electron-irradiated fluoroethylene propylene. *J Phys D-Appl Phys*, 2000, 33: 430–436
- 56 Bloß P, Steffen M, Schäfer H, et al. A comparison of space-charge distributions in electron-beam irradiated FEP obtained by using heat-wave and pressure-pulse techniques. *J Phys D-Appl Phys*, 1997, 30: 1668–1675
- 57 Bauer S, Bauer-Gogonea S. Current practice in space charge and polarization profile measurements using thermal techniques. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2003, 10: 883–902
- 58 Ploss B, Emmerich R, Bauer S. Thermal wave probing of pyroelectric distributions in the surface region of ferroelectric materials: A new method for the analysis. *J Appl Phys*, 1992, 72: 5363–5370
- 59 Mellinger A, Singh R, Gerhard-Multhaupt R. Fast thermal-pulse measurements of space-charge distributions in electret polymers. *Rev Sci Instrum*, 2005, 76: 4804–4132
- 60 Aryal S, Mellinger A. Resolution-enhanced polarization imaging with focused thermal pulses. *J Appl Phys*, 2013, 114: 154109
- 61 Simmons J G, Tam M C. Theory of isothermal currents and the direct determination of trap parameters in semiconductors and insulators containing arbitrary trap distributions. *Phys Rev B*, 1973, 7: 3706–3713
- 62 Gao Y, Du B X. Characterizing space charge transportation in HV XLPE cable insulation based on surface potential decay measurement (in Chinese). *High Volt Eng*, 2012, 38: 2097–2103 [高宇, 杜伯学. 采用表面电位衰减法表征高压交联聚乙烯电缆绝缘中空间电荷的输运特性. *高电压技术*, 2012, 38: 2097–2103]
- 63 Bucci C, Fieschi R, Guidi G. Ionic thermocurrents in dielectrics. *Phys Rev*, 1966, 148: 816–823
- 64 Ieda M. Electrical conduction and carrier traps in polymeric materials. *IEEE Trans Electr Insul*, 1984, EI-19: 162–178
- 65 Mellinger A, González F C, Gerhard-Multhaupt R. Ultraviolet-induced discharge currents and reduction of the piezoelectric coefficient in cellular polypropylene films. *Appl Phys Lett*, 2003, 82: 254–256

- 66 Zhang Y W, Yang B, Tu D, et al. Measuring distribution of carrier trap energy state density at interface of dielectric with step pressure wave method. In: Proceedings of the Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena. Leesburg: IEEE, 1989. 303–308
- 67 Zhang C, Mizutani T, Kaneko K, et al. Decay of space charge in LDPE and its blend polymer. *J Phys D-Appl Phys*, 2002, 35: 1875–1879
- 68 Wu J, Yi Y, Li L, et al. Space charge trapping and conduction in low-density polyethylene/silica nanocomposite. *Jpn J Appl Phys*, 2012, 51: 041602
- 69 Zhang Y, Yin X G. Comparative research on HVDC and UHV power transmission (in Chinese). *High Volt Eng*, 2001, 27: 44–46 [詹奕, 尹项根. 高压直流输电与特高压交流输电的比较研究. *高电压技术*, 2001, 27: 44–46]
- 70 Wang W W, Li S T. Research status and development of insulation breakdown in engineering solid dielectrics (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2020, 65: 3461–3474 [王威望, 李盛涛. 工程固体电介质绝缘击穿研究现状及发展趋势. *科学通报*, 2020, 65: 3461–3474]
- 71 Jeong I B, Kim J S, Lee J Y, et al. Electrical insulation properties of nanocomposites with SiO₂ and MgO filler. *Trans Electrical Electron Mater*, 2010, 11: 261–265
- 72 Tanaka T, Montanari G C, Mulhaupt R. Polymer nanocomposites as dielectrics and electrical insulation-perspectives for processing technologies, material characterization and future applications. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2004, 11: 763–784
- 73 Hu Y, Liao X, Ji J. Application research progress of nano-filler in polyethylene composites for high voltage direct current cable (in Chinese). *Insul Mater*, 2013, 46: 25–28 [胡阳, 廖霞, 戢菁. 纳米填料在高压直流电缆用聚乙烯复合材料应用中的研究进展. *绝缘材料*, 2013, 46: 25–28]
- 74 Lee S H, Park J K, Han J H, et al. Space charge and electrical conduction in maleic anhydride-grafted polyethylene. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 1995, 2: 1132–1139
- 75 Suh K S, Yoon H G, Lee C R, et al. Space charge behavior of acrylic monomer-grafted polyethylene. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 1999, 6: 282–287
- 76 Kharitonov A P. Direct fluorination of polymers—From fundamental research to industrial applications. *Prog Org Coat*, 2008, 61: 192–204
- 77 Fang L, Fu H J, Lü L, et al. Space charge distribution of polyethylene after surface treatment by plasma (in Chinese). *Proc Chin Soc Elect Eng*, 2003, 23: 151–154 [方亮, 付海金, 吕亮, 等. 等离子表面处理聚乙烯中空间电荷分布. *中国电机工程学报*, 2003, 23: 151–154]
- 78 Zhang C, Mizutani T. Space charge behavior of LDPE with a blocking electrode. In: Proceedings of the Conference on Electrical Insulation & Dielectric Phenomena. Cancun: IEEE, 2002. 614–617
- 79 Morshuis P H F, Smit J J. Partial discharges at DC voltage: Their mechanism, detection and analysis. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2005, 12: 328–340
- 80 Volpov E. Dielectric strength coordination and generalized spacer design rules for HVAC/DC SF₆ gas insulated systems. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2004, 11: 949–963
- 81 Xue J Y, Wang H, Li K F, et al. Research on charge distribution characteristics on spacer surface in DC GIL (in Chinese). *Proc Chin Soc Elect Eng*, 2018, 38: 6164–6172 [薛建议, 王涵, 李科峰, 等. 直流GIL中盆式绝缘子表面电荷分布特性研究. *中国电机工程学报*, 2018, 38: 6164–6172]
- 82 Sessler G M. *Electrets*. Berlin: Springer-Verlag, 1957
- 83 Hilczner B M J. *Electrets*. New York: Elsevier, 1986
- 84 Minami T, Utsubo T, Yamatani T, et al. SiO₂ electret thin films prepared by various deposition methods. *Thin Solid Films*, 2003, 426: 47–52
- 85 Sessler G M, Hillenbrand J. Electromechanical response of cellular electret films. *Appl Phys Lett*, 1999, 75: 3405–3407
- 86 Zhang Y, Zheng F, An Z, et al. Research on space charge in insulating and functional dielectrics at Tongji University. *IEEE Electr Insul Mag*, 2012, 28: 14–25
- 87 Sessler G M. *Electrets*. 2nd ed. New York: Springer-Verlag, 1987
- 88 Sessler G M. Silicon microphones. *J Audio Eng Soc*, 1996, 44: 16–22
- 89 Wu Z H, He H J, Xu S H. Development from the acoustoelectric conversion to electroacoustic conversion of electrets (continued) (in Chinese). *Audio Eng*, 2012, 36: 19–22 [吴宗汉, 何鸿钧, 徐世和. 从驻极体声电转换到驻极体电声转换的发展(待续). *电声技术*, 2012, 36: 19–22]
- 90 Suzuki Y. Recent progress in MEMS electret generator for energy harvesting. *IEEJ Trans Elec Electron Eng*, 2011, 6: 101–111
- 91 Mitcheson P D, Yeatman E M, Rao G K, et al. Energy harvesting from human and machine motion for wireless electronic devices. *Proc IEEE*, 2008, 96: 1457–1486
- 92 Liang Y Y, Jiang J, Cui L L, et al. Development of electret enhancing the drug penetration through the skin (in Chinese). *Chin J Med Phys*, 2007, 26: 264–266 [梁媛媛, 江键, 崔黎丽, 等. 驻极体促进药物透皮吸收的研究进展. *中国医学物理学杂志*, 2007, 26: 264–266]
- 93 Yasuda I W. Electrical callus and callus formation by electret. *Clin Orthop Relat Res*, 1977, 124: 53–56
- 94 Tkachenko S S, Rutskii V V, Grachev I R, et al. The optimization of bone repair in open comminuted fractures of the long bones. *Voenno-meditsinskii Zhurnal*, 1992, 80: 20–22
- 95 Yang J Q, Tian T. Application of electret filtration material in air purification (in Chinese). *J Environ Health*, 2009, 26: 89–91 [杨荆泉, 田涛. 驻极体过滤材料及其在空气净化领域的应用. *环境与健康杂志*, 2009, 26: 89–91]

- 96 Matsui K, Tanaka Y, Takada T, et al. Numerical analysis of packet-like charge behavior in low-density polyethylene under DC high electric field. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 2008, 15: 841–850
- 97 Xia J, Zhang Y, Zheng F, et al. Numerical analysis of packetlike charge behavior in low-density polyethylene by a Gunn effectlike model. *J Appl Phys*, 2011, 109: 034101
- 98 Roy S, Segur P, Teyssedre G, et al. Description of bipolar charge transport in polyethylene using a fluid model with a constant mobility: Model prediction. *J Phys D-Appl Phys*, 2004, 37: 298–305
- 99 Liao R J, Lu Y C, Yang L J, et al. Numerical calculation of the trap depth for space charge in polymer insulators (in Chinese). *Insul Mater*, 2006, 39: 51–54 [廖瑞金, 陆云才, 杨丽君, 等. 聚合物电介质中空间电荷陷阱深度的模拟计算. *绝缘材料*, 2006, 39: 51–54]
- 100 Hayase Y, Osada T, Takada T, et al. Numerical estimation of trap depth in polymeric materials using molecular orbital method. In: *Proceedings of the 2009 IEEE Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*. Virginia: IEEE, 2009. 161–164
- 101 Wang X, Chen C, Hao J Q, et al. Recovery algorithm for space charge waveform in coaxial cable under temperature gradient. *Sensor Mater*, 2017, 29: 1147–1157
- 102 Zheng F H, Zhang Y W. Progress in research on space charge distribution measurements in solid dielectric thin films (in Chinese). *High Volt Eng*, 2020, 46: 2460–2470 [郑飞虎, 张治文. 绝缘电介质薄膜中空间电荷分布测量技术的研究进展. *高电压技术*, 2020, 46: 2460–2470]

Summary for “固体绝缘介质中的空间电荷效应及应用”

Space charge effect and application in solid insulation dielectrics

Yewen Zhang¹, Jiaping Pan¹, Qingquan Lei² & Feihu Zheng^{1*}

¹ College of Electronic and Information Engineering, Tongji University, Shanghai 201804, China;

² Key Laboratory of Engineering Dielectrics, Harbin University of Science and Technology, Harbin 150080, China

* Corresponding author, E-mail: feihuzheng@tongji.edu.cn

Space charge effect and its application in solid insulation dielectrics are long-term issues with continuous development. The study of space charge effect is of great significance to high-voltage direct current (HVDC) transmission. This paper summarizes the development history and research progress of space charges in solid dielectrics, from the aspects of measurement technologies, damage, suppression, application, and simulation, etc. Currently, the most widely used space charge distribution measurement technologies can be roughly divided into two categories, acoustic effect technique and thermal effect technique, whose spatial resolution and application range are different. For the acoustic effect technique, pressure wave propagation method and pulsed electro-acoustic method are most commonly used with proven technique. The spatial resolutions of these two are similar, both can reach an average of 10 μm . With extremely narrow pulses, the highest spatial resolution can reach about 1 μm . The thermal effect techniques, such as thermal pulse method and laser intensity modulation method, have more advantages in spatial resolution and practicability, especially for micron-thick film detection. Future research may focus on the more widely application of space charge distribution measurement technologies to electrical equipment in operation. For the trap parameters and charge storage properties of insulation dielectrics, there is still a lack of reliable and practical measurement technologies. The results of the isothermal decay method are more reliable and credible, but the required measurement time is too long. Therefore, it has been rarely used in practice in recent years. The most commonly used methods, thermal stimulated discharge current method and photo stimulated discharge method, each has its own disadvantages. And their results for the same sample are quite different for mutual corroboration. In recent years, some researchers are more focused on piezo-stimulated current method, but this method is still in a preliminary stage of experiment and application. In general, the space charge effect has pros and cons. On one hand, space charge accumulation in solid insulation dielectrics may cause electric field distortion and discharge damage, eventually lead to breakdown and destruction of insulation. In order to prevent these damages, many effective methods have been proposed, such as surface modification of insulation dielectrics and material modification by additives. However, these methods have not yet been practically used in industrial applications. On the other hand, space charge effect also has many efficient applications. One of the most important applications is electret, a dielectric material that quasi-permanently stores real charges in surface or volume traps. A large number of significant contributions have been published on preparation process, charge characteristics and applications of electrets. The simulation research of space charges can mainly be divided into physical model research of space charge behavior and data processing of experimental results. The development of space charge simulation is relatively backward compared to other research fields as the physical model of space charge behavior has not yet been built completely. The issues of space charge effect and its application are involved with multiple factors. Although some technical and theoretical developments have been achieved in recent years, there are still some uncertain questions remained to be explored.

space charge measurement, space charge suppression, trap level, electret

doi: [10.1360/TB-2021-0318](https://doi.org/10.1360/TB-2021-0318)