

聚酰亚胺薄膜的高场电导特性 *

张沛红 李刚 盖凌云 雷清泉

(哈尔滨理工大学电气与电子工程学院 哈尔滨 150040)

摘要 研究了 Dupont 原始及耐电晕聚酰亚胺薄膜在 10 kV/mm、20 kV/mm 电场下电晕老化 8 h 前后和在不同温度下的高场电导特性。结果表明，原始及耐电晕聚酰亚胺薄膜老化前的电老化阈值分别为 35 kV/mm 和 45 kV/mm，并随着老化电场的增加而下降。随着温度的升高，原始聚酰亚胺薄膜的电老化阈值明显增加，而耐电晕薄膜的电老化阈值略有下降。耐电晕薄膜的电导电流比原始薄膜约大一个数量级。根据空间电荷限制电流与温度的关系，求出原始和耐电晕聚酰亚胺薄膜的陷阱能级分别为 0.9 eV 和 0.7 eV。

关键词 有机高分子材料，聚酰亚胺薄膜，电导电流，电老化阈值，陷阱能级

分类号 TB324

文章编号 1005-3093(2006)05-0465-04

High-field conduction current characteristics of polyimide film

ZHANG Peihong LI Gang GAI Lingyun LEI Qingquan**

(Electrical & Electronic Engineering College, Harbin Univ. Sci. Tech., Harbin 150040)

* Support by National Natural Science Foundation of China under Grant No.50137010.

Manuscript received January 21, 2006; in revised form March 27, 2006.

** To whom correspondence should be addressed, Tel:(0451)86396210, E-mail:Lei_qingquan@sina.com.

ABSTRACT The field dependent conduction current of both Dupont original and corona-resistant polyimide films before and after corona-aged 8 hours at 10 kV/mm and 20 kV/mm electric field, and at different temperatures was measured respectively. The results show that the electrical degradation threshold of original and corona-resistance polyimide film is 35 kV/mm and 45 kV/mm, and decreases with the increasing of aging electric field. With the increase of temperature, the electric degradation threshold of original film increases and of the corona-resistant film decreases. The conduction current of corona-resistant polyimide film is larger by about one order of magnitude than that of original one. The trap energy level of 0.9eV and 0.7eV was derived from Arrhenius plot respectively.

KEY WORDS organic polymer materials, original and corona-resistant polyimide films, conduction current, electrical degradation threshold, trap level

在使用变频调速技术的牵引电机中，电机线圈首端匝绝缘承受的场强可达工频场强的几十至上百倍^[1,2]，使电机绝缘过早损坏^[3~9]。聚酰亚胺薄膜是一种性能优异的电气设备绝缘材料。Dupont 耐电晕聚酰亚胺薄膜 100CR 的耐电晕性与云母纸相当^[10]。100CR 薄膜耐电晕性的提高是由于其中加入了无机成分。有机相与无机相间的巨大界面及复杂的界面结构改变了电荷受陷及输运过程，从而影响材料的电荷注入、导电和击穿及老化特性^[11,12]。根据材料的电导电流特性可以求得材料的载流子迁移率、陷阱深度

和受俘获载流子密度^[13~15]，对理解高聚物的电性能和研究有机-无机复合物的耐电晕机理十分重要。

根据空间电荷限制电流理论 (Space Charge Limit Current, SCLC)^[16]，材料的电导电流特性 $J-V$ 曲线由欧姆区、空间电荷限制电流区和陷阱充满区三个区域组成。材料的电老化阈值指欧姆区与空间电荷限制电流区的转折点所对应的电压，在均匀电场下近似用场强表示，相当于材料开始老化的最低电场强度。空间电荷开始在绝缘中积累的电场作为材料的电老化阈值电场，是材料开始老化的最低场强，当工作场强在阈值电场以下时，绝缘有相当长的老化寿命和高的可靠性。因此，材料的电老化阈值与空间电荷积累的速率是重要的绝缘特性。本文研究聚酰亚胺薄膜的高场电导特性。

* 国家自然科学基金重点项目 50137010 资助。

2006 年 1 月 21 日收到初稿；2006 年 3 月 27 日收到修改稿。

本文联系人：雷清泉，院士

1 实验方法

将 Dupont 原始聚酰亚胺薄膜 100HN 和耐电晕聚酰亚胺薄膜 100CR 薄膜裁剪成若干 45 mm × 45 mm 的试样并分别分为 3 组。第一组和第三组试样双面蒸镀铝电极；第二组试样单面镀铝电极并分别在 10 kV/mm 和 20 kV/mm 交流电场下电晕老化 8 h，老化后在另一面镀电极。使用板-板电极进行电晕老化，在试样表面与上电极间留有 0.1 mm 的间隙。所有试样的厚度均为 25 μm，蒸镀的铝电极直径为 25 mm。测量前将样品在 150 °C 下短路 24 h，以去除水分和残留电荷的影响。

对第一组和第二组试样在室温环境下加直流电压，对第三组试样分别在 30, 80, 130 和 180 °C 温度下加直流电压。加直流电压时，从 0.25 kV(平均场强 10 kV/mm) 开始每次升压 0.125 kV，直至 2.5 kV(平均场强 100 kV/mm)，每次加压 1 h 后用 Keithley-6517 静电计记录电导电流。

2 结果与讨论

从图 1 和表 1 可以看出，100CR 的电导电流比 100HN 约大一个数量级，空间电荷限制电流区的曲

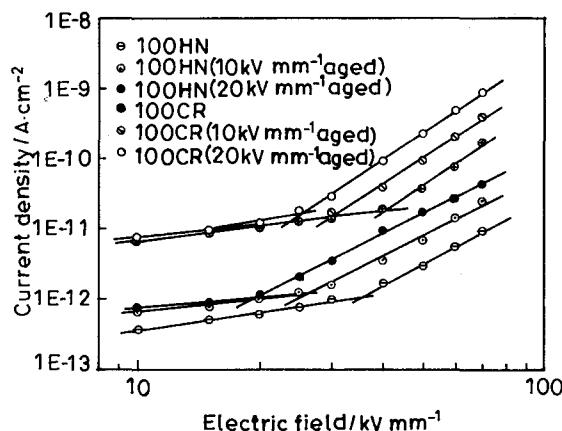


图 1 100HN 和 100CR 电晕老化前后的 $J-E$ 特性

Fig.1 $J-E$ characteristics of 100HN and 100CR before and after corona aged

表 1 100HN 和 100CR 老化前后的电老化阈值 (kV/mm)

Table 1 Electric degradation thresholds of 100HN and 100CR before and after corona aged(kV/mm)

Sample	Before aged	After 10 kV/mm aged	After 20 kV/mm aged
100HN	35	28	20
100CR	45	30	25

线斜率分别为 3.87 和 3.12，随着电晕场强的增加，电老化阈值降低，老化后电导电流增大。

图 2 和图 3 表明，随着温度的增加，电导电流增加。100HN 的电老化阈值随温度增加而增加，100CR 的电老化阈值随温度增加略有下降 (表 2)。

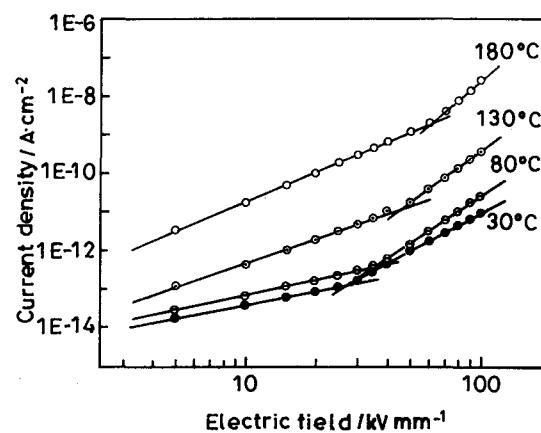


图 2 100HN 不同温度下的 $J-E$ 特性

Fig.2 $J-E$ characteristic of 100HN at different temperature

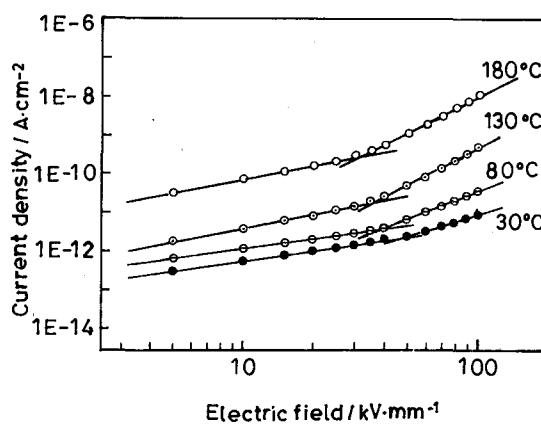


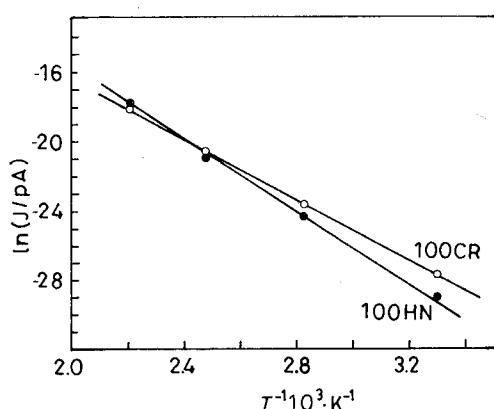
图 3 100CR 不同温度下的 $J-E$ 特性

Fig.3 $J-E$ characteristic of 100CR at different temperature

表 2 100HN 和 100CR 不同温度下的电老化阈值 (kV/mm)

Table 2 Electric degradation thresholds of 100HN and 100CR under different temperature (kV/mm)

Sample	30 °C	80 °C	130 °C	180 °C
100HN	35	40	50	60
100CR	45	40	35	30

图 4 两种薄膜的 $\ln(J) \sim T^{-1}$ 曲线Fig.4 $\ln(J) \sim T^{-1}$ function graph of the two films

根据 Arrhenius 方程

$$\xi = A \exp\left(\frac{-E_t}{kT}\right) \quad (1)$$

并假设 J 与 E 关系服从欧姆定律, 陷阱能级 E_t 可由 $\ln(J) \sim T^{-1}$ 曲线 (图 4) 的斜率 $\frac{E_t}{k}$ 求出, 其中 J 为电导电流密度, T 为热力学温度, k 为 Boltzmann 常数. 计算出的 100HN 和 100CR 的陷阱能级分别为 0.9 eV 和 0.7 eV.

根据空间电荷限制电流理论, 在没有陷阱存在时, 空间电荷限制电流密度

$$J = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \frac{V^2}{d^3} \quad (2)$$

产生空间电荷限制电导的电压

$$V_\Omega = \frac{8}{9} \frac{\varepsilon n d^2}{\varepsilon} \quad (3)$$

有陷阱存在时, 空间电荷限制电流密度为

$$J = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \theta_a \frac{V^2}{d^3} \quad (4)$$

从欧姆电导向空间电荷限制电导的过渡电压为

$$V_\Omega = \frac{8}{9} \frac{1}{\varepsilon} (n + n_t) ed^2 \quad (5)$$

其中 ε 为介电常数, μ 为载流子迁移率, V 为外加电压, d 为试样厚度, θ_a 为自由载流子密度与总(自由的和受俘获的)载流子密度之比, 即 $\theta_a = \frac{n}{n+n_t}$, 其中 n 为自由载流子密度, n_t 为受陷载流子密度.

由于无机掺杂聚合物中无机-有机相间高的界面陷阱密度, 即 $n_t \gg n$, 根据 (5) 式, 100CR 薄膜的电老化阈值大于 100HN. 100CR 薄膜空间电荷限制电流区更大的曲线斜率, 说明试样中空间电荷积累

快, 即薄膜中有更多的浅陷阱, 这一结果与文献 [17] 中退极化电流的特性一致. 因为 100CR 薄膜中加入无机成分提高了导电性 [18], 所以 100CR 薄膜的电导电流比 100HN 薄膜的大.

实验结果表明, 100HN 的电老化阈值 E_Ω 随着温度的提高明显增大, 而 100CR 的略有下降. 这种相反变化趋势的原因可能是, 100CR 薄膜中受陷载流子的密度 n_t 大 [17], 随着温度的升高, 热激发载流子增多, 相当于使 n_t 减小, 故 V_Ω 减小, 即 E_Ω 减小. 对于 100HN 薄膜, 由于出现 SCLC 的条件是 $J_c > J_b$ (J_c , 电极发射电流, J_b , 体电流), 温度的提高引起电荷从陷阱中释放, 使导带中的载流子密度增大, 材料欧姆区的电导增大, 从而使 J_b 增加, 故必须提高 J_c , 导致 E_Ω 的增大. 在试验温度范围内聚酰亚胺的介电常数变化很小, 可以认为是常数 [19]. 100CR 的陷阱深度 (0.7 eV) 比 100HN (0.9 eV) 的低, 也可以解释耐电晕聚酰亚胺薄膜的电导电流比原始薄膜的大 (图 1).

3 结论

100CR 薄膜的电导电流比 100HN 薄膜的约大一个数量级, 前者的电老化阈值比后者的高, 两种薄膜的电老化阈值均随着老化场强的增大而下降, 在空间电荷限制电流区 100CR 薄膜的电导电流曲线的斜率比 100HN 薄膜的大. 随着温度的增加, 100HN 薄膜的电老化阈值增加, 100CR 的电老化阈值下降. 在同样场强下注入的载流子大多被浅陷阱俘获, 积聚的能量导致内部电场畸变和贮存大量的机械能, 引起断键、微孔和内部应力, 最终导致材料击穿. 100CR 的耐电晕性比 100HN 有很大的提高, 100CR 薄膜中具有更多的浅陷阱是其耐电晕性提高的重要原因.

参考文献

- M.Kaufhold, G.Borner, M.Eberhardt, J.Speck, IEEE Electrical Insulation Magazine, **12**(5), 9(1996)
- C.Hudon, N.Amyot, T.Lebey, P.Castelan, N.Kandev, IEEE Trans. on DEI., **7**(6), 783(2000)
- J.P.Bellomo, Characterization of voltage shapes acting on the insulation of rotating machines supplied by inverters, in Proc. of 4th ICPADM (Brisbane, Australia, 1994) p.792~795
- C.J.Melhorn, IEEE Trans. on IA., **33**(4), 1065(1997)
- E.Persson, IEEE Trans. on IA., **28**(5), 1095(1992)
- WAN Jianru, LIN Zhiqiang, YU Huajun, Proceedings of the CSEE, **21**(11), 43(2001)
(万健如, 林志强, 禹华军, 中国电机工程学报, **21**(11), 43(2001))
- Weijun Yin, IEEE Electrical Insulation Magazine, **13**(6), 18(1997)
- D.H.Hwang, IEEE International Symposium on Industrial Electronics, **1**, 477(2001)

- 9 Yin Weijun, Critical factors for early failure of wires in inverter-fed motor.[R] Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), Annual Report, Oct. 22-25, 258(1995)
- 10 M.Katz, R.J.Theis, IEEE Electrical Insulation Magazine, **13**(4), 24(1997)
- 11 G.Damamme, C.Le Gressus, A.S.De Reggi, IEEE Trans. on DEI., **4**(5), 558(1997)
- 12 T.J.Lewis, IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., **11**, 739(2004)
- 13 G.C.Montanari, I.Ghinello, IEEE Trans. on DEI., **5**(1), 148(1998)
- 14 G.C.Montanari, IEEE Trans. on DEI., **7**(3), 309(2000)
- 15 J.L.Auge, C.Laurent, D.Fabiani, G.C.Montanari, IEEE Trans. on DEI., **7**(6), 797(2000)
- 16 Kwan C. Kao, Wei Hwang, *Electrical Transport in Solids* (London, Pergamon Press, 1981) p.169
- 17 ZHANG Peihong, FAN Yong, WANG Fochi, XIE Hua, LI Gang, LEI Qingquan, Chin. Phys. Lett., **22**(5), 1253(2005)
- 18 M.Salah Khalil, IEEE Trans. on DEI., **7**(2), 261(2000)
- 19 LEI Qingquan, *The Structure and Electrical Performance of Polymer* (Wuhan, China, Hust Press, 1990) p.92
(雷清泉, 高聚物的结构与电性能 (武汉, 华中理工大学出版社, 1990) p.92)