

聚乙烯空间电荷包行为的形成机理与仿真方法研究*

夏俊峰¹⁾ 张治文^{1)†} 郑飞虎¹⁾ 雷清泉²⁾

1) 同济大学波耳固体物理研究所, 上海 200092)

2) 哈尔滨理工大学 电气与工程学院, 哈尔滨 150080)

(2009 年 3 月 16 日收到, 2009 年 4 月 17 日收到修改稿)

聚乙烯中的空间电荷包行为是空间电荷的一种特殊的输运行为. 研究表明, 空间电荷包行为由于受材料本身特性、外加电场大小以及环境温度等的影响, 导致其产生过程及传输特性上存在较大差异, 这些因素给空间电荷包行为产生机理研究带来了较大困难. 通过对电荷的电极注入过程、载流子的体内迁移规律及空间电荷与体内陷阱的相互作用机制进行分析, 探讨了不同外加电场及不同深度陷阱能级对电荷包行为造成的相关影响, 在此基础上建立物理模型来描述电荷包的产生和迁移过程. 模型中提出了在高于阈值电场时, 载流子迁移速度与电场关系存在负微分迁移率的假设. 基于此模型对空间包行为的模拟结果与实验结果取得较好的一致.

关键词: 空间电荷包, 数值模拟, 负微分迁移率

PACC: 7110, 7750, 7210, 7220J

1. 引 言

高分子聚合物以其优异的绝缘性能、稳定的化学性能及良好的可加工性而广泛应用于高压输电设备尤其是绝缘电缆上. 在强场作用下, 聚合物中的局部区域及电极介质界面处会因净的正电荷或负电荷积累而产生空间电荷. 空间电荷是影响聚合物材料电气性能和使用寿命的重要因素^[1,2]. 研究发现, 当对某些聚乙烯材料施加一定高场时, 空间电荷会在材料内以孤立的波包形态积累且在迁移过程中不发生弥散, 这种现象被称之为空间电荷包行为. Hozumi 等^[3]发现在对交联聚乙烯材料施加高于 100 MV/m 外场时, 正的空间电荷包会在样品阴极附近处产生. See 等^[4]认为交联聚乙烯中产生正空间电荷包的阈值电场为 140 MV/m. Kon 等^[5]在超过 120 MV/m 电场下的交联聚乙烯材料中观察到负空间电荷包, Matsui 等^[6]在大于 100 MV/m 的高场下低密度聚乙烯中也观测到类似的空间电荷包现象, 但极性为正. 我们采用激光压力波法在 50 MV/m 的较低场强下低密度聚乙烯中发现了电荷为正的电荷包^[7,8]. 文献^[9]研究了 150 MV/m 下 MgO 掺杂低密度聚乙烯

的空间电荷包行为. 由于空间电荷包的产生、迁移、消散过程会严重影响介质内部场强, 导致导电电流的振荡, 甚至可能造成材料内部的物理化学变化, 因此对空间电荷包的产生机理及迁移方式的阐释一直是亟待解决的热点问题之一.

目前国际上许多学者建立了各类物理模型来解释空间电荷包行为. 文献^[10]指出, 空间电荷包主要由杂质能级解离构成, 即材料内部存在的受主陷阱能级有较强的场依赖性, 在局域电场达到某阈值电场时, 受主能级在场激励下离化产生大量负电中心, 当这些负电中心不能完全和阳极补充的自由空穴中和时, 就产生了负的空间电荷包. 而文献^[11]则提出, 注入过量电荷诱发的电场畸变使样品内部存在电场不同的区域, 低场区束缚电荷难于脱陷, 陷阱易被填满而降低了载流子的入陷概率, 使得低场区的电导率要高于高场区的电导率, 载流子在迁移过程中就会在低场区和高场区分界面上产生电荷积累而形成空间电荷包. 然而, 由于空间电荷易受材料的聚集状态、制备过程中引入的外来杂质能级、电极与样品之间的界面态等因素影响, 导致不同聚乙烯材料在实验中观测到的电荷包在外加场强、电荷极性、产生过程、变化趋势等方面都存在差异, 因此上述模型

* 国家自然科学基金重点项目(批准号: 50537040)、国家自然科学基金(批准号: 50807040)和上海市科学技术委员会(编号: 07DZ22302)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: yewenzhang@online.sh.cn

虽然在描述某一类电荷载行为时相当成功,但无法同时解释多种不同的电荷载迁移现象.本文在借鉴上述模型的基础上,综合考虑了电荷注入、载流子迁移以及与陷阱的相互作用等因素对电荷载行为的影响,提出一种新的物理模型来描述空间电荷载行为,通过改变材料的一些参数(如陷阱能级和外加场强等)就能很好的模拟出不同的空间电荷载行为.基于该模型对低密度聚乙烯材料中几种电荷载行为的模拟结果在电场变化规律、电荷载随时间变化规律等都与相应实验结果十分符合.

2. 电荷的注入、迁移与俘获模型

实验发现的空间电荷载极性可能因材料及电场的差异有正负之分,但仍以单极性电荷载迁移为主.本文从简化计算角度考虑,以阳极空穴单极性注入为例来分析空间电荷载行为.

2.1. 电荷的注入

在低密度聚乙烯材料中,电极注入电荷通常是空间电荷载中电荷的主要来源^[7].理想情况下,注入

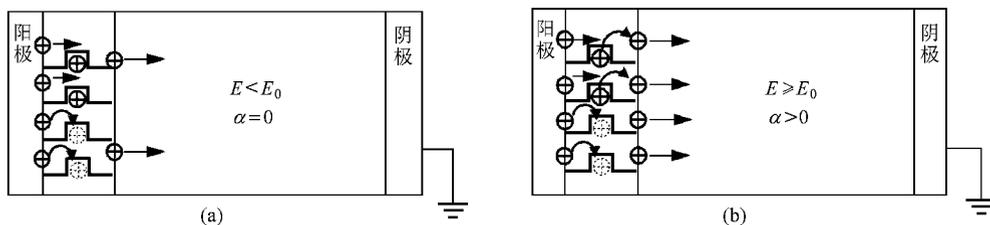


图 1 电极处电荷的注入过程 (a)低场 (b)高场

如图 1 所示,聚乙烯材料在与电极接触的表面薄层内一般会存在较高密度的表面陷阱,当外加高场后,薄层内的自由载流子密度 $n_{c,ex}$ 、陷阱电荷密度 $n_{t,ex}$ 均近似为均匀分布.从电极注入薄层的电流密度为 j_0 ,从薄层流出的电流密度为 j'_0 ,电流密度的大小在图 1 中用正电荷的数目来表示.设界面处电场为 E ,薄层厚度为 d_0 ,则薄层内描述电荷俘获效应的动态方程为

$$\frac{dn_{c,ex}}{dt} = an_{t,ex} + (\beta - \gamma)n_{c,ex} - \frac{j'_0 - j_0}{d_0}, \quad (2)$$

$$j'_0 = \mu n_{c,ex} E, \quad (3)$$

其中 α 为场致电荷脱陷率,在低场下其值为零,电场超过阈值 E_0 则大幅上升; β 为碰撞电离离化率,一般认为低密度聚乙烯材料的解离源较少,可以不

考虑电离作用,故该项恒为零, γ 为自由电荷入陷率,受电场影响较小,可以假定为常量^[13]; j_0 满足 Schottky 注入方程; μ 为薄层内载流子迁移率.当外加电场低于阈值电场时,注入过程如图 1(a)所示,从电极进入介质内的载流子一部分被表面陷阱俘获后很难在较短时间内脱陷,所以只有部分电荷可以向体内传导.当 $E < E_0$ 时, $\alpha = 0$, (2) 式成为

$$\frac{dn_{c,ex}}{dt} = -\gamma n_{c,ex} - \frac{j'_0 - j_0}{d_0}. \quad (4)$$

将 (4) 式代入 (3) 式并解此一阶微分方程得

$$j'_0 = \frac{j_0}{1 + \frac{\gamma d_0}{\mu E}} \left[1 - \exp\left(-\left(\gamma + \frac{\mu E}{d_0}\right)t\right) \right]. \quad (5)$$

令 $\theta = \mu E (\mu E + \gamma d_0)$. 则稳态时 $j'_0 = \theta j_0$. 通常

电流密度 j_0 遵循 Richardson-Schottky 方程

$$j_0 \propto \exp\left(-\frac{\phi}{k_B T}\right) \exp(B_{stt} E^{1/2}), \quad (1)$$

其中 ϕ 表示界面的功函数差, B_{stt} 表示 Richardson-Schottky 发射系数.然而(1)式描述的仅是电荷从金属电极发射到样品表面的电流方程,而实际电极的注入情况与接触界面的紧密程度、材料中的杂质、介质表面的陷阱能级分布等因素密切相关,注入电荷易被束缚在材料表面附近形成空间电荷层而对后继电荷注入造成影响,导致真实注入电流并不严格符合 Schottky 方程.文献 [12] 曾采用电声脉冲法 (PEA) 法测量了聚乙烯材料在高场下的电荷分布和传导电流,发现只有电场强度超过一定的临界值时,介质中的传导电流才会急剧增大并伴随空间电荷积累现象的产生.Zeller^[13] 也指出,电荷只有在注入电场高于阈值 E_0 时才能注入介质中,空间电荷的注入遵循电场限制空间电荷模型 (FLSC).实验中观察到的空间电荷载行为一般都在高于某阈值电场时发生,并且伴随着电荷的不连续注入,因此这种现象可以采用 FLSC 理论来解释.

聚乙烯材料中载流子迁移率很小,且表面陷阱对电荷的俘获作用很强,故有 $\gamma \gg \mu E / d_0$, 所以 $j'_0 \ll j_0$.

当外加电场高于阈值场强时,由于外场较高,被俘获的电荷易克服势垒脱陷,当入陷电荷和脱陷电荷达到平衡时,相当于薄层内无陷阱存在情况.此时通过薄层注入材料体内的电流应等同于电极注入电流,如图 1(b)所示.当 $E \geq E_0$ 时, $\alpha \neq 0$, 达到动态平衡时有 $\alpha n_{t,ex} = \gamma n_{c,ex}$ (2) 式成为

$$\frac{dn_{c,ex}}{dt} = - \frac{j'_0 - j_0}{d_0}. \quad (6)$$

将(6)式代入(3)式可解得

$$j'_0 = \left[1 - \exp\left(-\frac{\mu E}{d_0} t\right) \right] j_0. \quad (7)$$

综合考虑以上两种情况,经过材料表面陷阱调制后的电极注入电流可写为

$$\begin{aligned} j'_0 &= A \exp(-\phi / k_B T) \exp(B_{stt} E^{1/2}) \\ &= J(0) \exp(B_{stt} E^{1/2}) \quad (E \geq E_c), \\ j'_0 &= \theta j_0 \quad (E < E_c), \end{aligned} \quad (8)$$

(8)式说明在注入电场达到 E_c 时,注入电流有阶跃式上升,符合实验中测得注入电流特征^[12].因此本文在建立模型时采用 j'_0 代替 j_0 作为电极注入的电流密度.

注入电荷形成的电荷包会削弱注入电极处电场,随着电荷量的逐步积累,这种削弱作用会增强到使得电极处电场低于注入阈值电场而导致电荷几乎不再向介质内注入,电荷包由于得不到注入电荷的补充便不再生长而在电场驱动作用下发生迁移.因此,电极的不连续注入是诱发电荷包产生及迁移的重要因素.

2.2. 电荷在介质内的迁移

电极注入电荷会在电场作用下向材料体内迁移,电荷在介质中的传导遵循电流输运方程

$$\begin{aligned} j &= \mu n E, \\ v_c &= \mu E, \end{aligned} \quad (9)$$

式中 j 为传导电流密度, n 为自由电荷密度, E 为电场, v_c 为载流子迁移速率, μ 为载流子迁移率.低

密度聚乙烯材料的空间电荷包多由阳极注入的同极性电荷构成.研究指出,低密度聚乙烯中的载流子传输表现为相毗邻聚乙烯链价带间的隧穿效应,如图 2 所示.当载流子在两条聚乙烯链间传输时,在 a 处较之于 b 处要困难得多.因此聚乙烯内部晶态结构对载流子传导有重要影响,一般情况下,载流子迁移速率随电场增大而提高,但在某些材料中,较高电场产生的电致应力对聚乙烯链的离解作用将会对载流子的传输产生负效应^[14].当电场超过阈值电场 E_1 时,电场的进一步升高反而会导致载流子的降低,这种情况下迁移速率与电场的关系曲线如图 3 所示,由于在电场 E_1 以上迁移速率对电场的导数为负,所以又称为负微分迁移率.

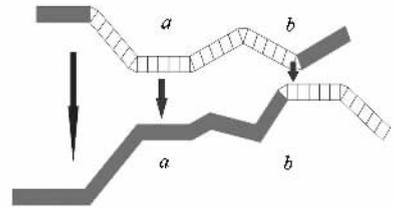


图 2 聚乙烯链间的载流子传输^[14]

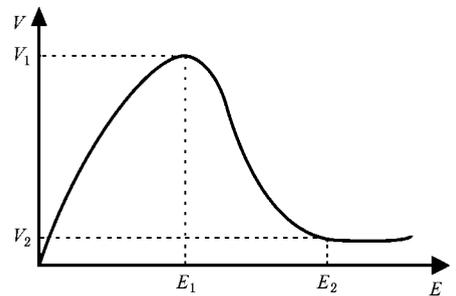


图 3 载流子迁移速率与电场关系

负微分迁移率使样品内因电场不均匀分布而产生迁移速率差,导致空间电荷在材料体内积累,这一现象有些类似于半导体物理中的耿氏效应^[15].本文基于负微分迁移率的假设来描述电荷迁移速率与电场的关系.开始时迁移速率随电场同步增大,当 $E = E_1$ 时,迁移速率达到最大 v_1 ,此后进入负微分迁移率段,当上升到高场 $E = E_2$ 时达到饱和迁移速率 v_2 ,之后维持不变.为了简化计算,采用线性模拟近似,具体方程如下:

$$v(x, t) = \begin{cases} \frac{v_1}{E_1} E(x, t) & (E(x, t) < E_1), \\ \frac{v_2 - v_1}{E_2 - E_1} E(x, t) + \frac{E_2 v_1 - v_2 E_1}{E_2 - E_1} & (E_1 \leq E(x, t) \leq E_2), \\ v_2 & (E(x, t) > E_2). \end{cases} \quad (10)$$

其中 v_1, v_2, E_1, E_2 均为给定常数.

2.3. 电荷陷阱模型

前面分析了表面陷阱可以影响电极电荷注入情况. 然而在聚合物材料中体内也存在着大量俘获载流子的陷阱, 当空间电荷载在电场驱动力作用下向背电极作定向移动时, 移动过程中也伴随着电荷的脱陷和入陷过程^[16]. 介质内的自由电荷密度与体内电流密度应满足连续性方程^[17]

$$\frac{\partial n_{c, \text{in}}(x, t)}{\partial t} + \frac{\partial n_{t, \text{in}}(x, t)}{\partial t} + \frac{n_{c, \text{in}}(x, t)}{\tau} = \frac{\partial j(x, t)}{\partial x}, \quad (11)$$

其中 $n_{c, \text{in}}(x, t)$ 为体内自由电荷密度, $n_{t, \text{in}}(x, t)$ 为体内陷阱电荷密度, 二者都是位置 x 和时间 t 的函数. $n_{c, \text{in}}(x, t) \tau$ 表示自由电荷和相反极性电荷的复合衰速率, 本文中只考虑电荷单极性注入, 所以该项为零. $j(x, t)$ 为电流密度, 包含传导电流密度和位移电流密度, 在聚合物材料内, 和传导电流相比, 位移电流对局部电流的贡献很小, 可以忽略^[18], 因此 $j(x, t)$ 只代表传导电流. 假设材料内只存在单一陷阱能级, 可以得到与(2)式类似的体内陷阱电荷的动力学方程^[17]

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_{t, \text{in}}(x, t)}{\partial t} = & -\nu_t n_{t, \text{in}}(x, t) + \gamma_i v_{c, \text{in}}(x, t) \\ & \times (M - n_{t, \text{in}}(x, t)) e n_{c, \text{in}}(x, t). \end{aligned} \quad (12)$$

从(10)式和(11)式可求出自由电荷密度的变化率为

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_{c, \text{in}}(x, t)}{\partial t} = & -\nu_t n_{t, \text{in}}(x, t) - \gamma_i v_{c, \text{in}}(x, t) \\ & \times (M - n_{t, \text{in}}(x, t)) e \\ & \times n_{c, \text{in}}(x, t) + \frac{\partial j(x, t)}{\partial x}, \end{aligned} \quad (13)$$

其中 ν_t 脱陷的电荷的尝试逃逸频率, M 为单位体积具有俘获截面 γ_i 的陷阱总数, e 为电子电量. (13)式右边各项分别表示场助热激发脱陷电荷、自由电荷被俘获引起的减少和自由电荷迁移引起的增量. 和 τ 相比, γ_i 和 M 随电场变化较小, 可以假定为常

数. 根据 Boltzmann 统计, 对深度为 U 的陷阱内的电荷逃逸频率服从

$$\nu_t = \nu_0 \exp(-U/k_B T). \quad (14)$$

由(13)式可知, 空间电荷的积累不仅和电流密度的梯度有关, 还和自由电荷与陷阱的相互作用有关.

当材料内部的陷阱能级较深时, (13)式中右边第一项远小于第二项, 故第一项可忽略, (12)和(13)式可简化为

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_{c, \text{in}}(x, t)}{\partial t} = & -\gamma_i v_{c, \text{in}}(x, t) (M - n_{t, \text{in}}(x, t)) e \\ & \times n_{c, \text{in}}(x, t) + \frac{\partial j(x, t)}{\partial x}, \end{aligned} \quad (15)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_{t, \text{in}}(x, t)}{\partial t} = & \gamma_i v_{c, \text{in}}(x, t) (M - n_{t, \text{in}}(x, t)) e \\ & \times n_{c, \text{in}}(x, t). \end{aligned} \quad (16)$$

这种情况下, 如果俘获截面 γ_i 及陷阱数量 M 较大时, 被陷阱俘获的电荷多于电流密度梯度引起的增量, 那么电荷包的电荷量在迁移过程中会逐渐衰减.

当材料内部的陷阱能级很浅时, ν_t 较大, 当自由电荷被俘获速率和热激发电荷脱陷速率处于动态平衡时, 则有

$$\begin{aligned} \nu_t n_{t, \text{in}}(x, t) = & \gamma_i v_{c, \text{in}}(x, t) (M - n_{t, \text{in}}(x, t)) e \\ & \times n_{c, \text{in}}(x, t). \end{aligned} \quad (17)$$

此时(13)式成为

$$\frac{\partial n_{c, \text{in}}(x, t)}{\partial t} = \frac{\partial j(x, t)}{\partial x}. \quad (18)$$

由(18)式可见, 浅陷阱对传导电流的影响可以忽略. 依以上所述, 若材料存在负微分迁移率, 则电流密度梯度引起的增量为正, 电荷包的电荷量在迁移过程中将逐渐增大.

以上对陷阱能级的讨论是建立在材料内部仅存在单一陷阱能级基础之上, 实际情况中还应考虑电场对陷阱能级的影响. 根据 Poole-Frenkel 效应, 在电介质内部若存在强电场时, 可以使俘获了载流子的陷阱的库仑势垒高度降低, 从而更易释放出更多的载流子参与导电, 此时陷阱电荷逃逸频率可写为^[18]

$$\nu_t = \nu_0 \exp(-(U - \beta_{\text{PF}} \sqrt{E})/k_B T), \quad (19)$$

式中 k_B 为波尔兹曼常数, T 为温度, β_{PF} 为 Poole-Frenkel 系数, U 为陷阱能级深度. 由于空间电荷的存在, 材料内部电场不是均匀分布, 故场致陷阱能级的改变也应为坐标 x 的函数.

3. 空间电荷包的动态模拟与实验仿真

3.1. 空间电荷包的生长过程

基于以上分析, 我们采用一维模型对空间电荷包行为进行模拟, 将阳极与样品的接触界面定义为 $x = 0$, 阴极处坐标为 $x = d$, d 为样品厚度. 在介质两端施加一定外场后, 阳极处的电荷体密度为 $n_{c, \text{in}}(0, t)$, 阴极电荷量为 $n_{c, \text{in}}(d, t)$, 电极的厚度为 d_0 . 根据 Gauss 定理, 有

$$\begin{aligned} n_{c, \text{in}}(0, t)d_0 &= \varepsilon\varepsilon_0 E(0, t), \\ n_{c, \text{in}}(d, t)d_0 &= -\varepsilon\varepsilon_0 E(d, t). \end{aligned} \quad (20)$$

实验中观察到的电荷包的宽度与电极峰的宽度大致相同, 因此可以认为电荷包中的空间电荷集中在样品内部的一个厚度为 Δx_0 的薄层内. 如果用 $\alpha(x_p, t)$ 来表示电荷包的电荷量, $x_p(t)$ 代表电荷包所处的位置, t 为加电荷包产生后经过的时间, 那么在 Δx_0 很小时, 电荷包中的电荷密度 $\rho(x_p, t)$ 与电荷量的关系可写为

$$\alpha(x_p, t) = \rho(x_p, t)\Delta x_0. \quad (21)$$

设样品内自由电荷体密度和陷阱电荷体密度分别为 $n_{c, \text{in}}(x, t)$ 和 $n_{t, \text{in}}(x, t)$, 则

$$\rho(x_p, t) = n_{c, \text{in}}(x_p, t) + n_{t, \text{in}}(x_p, t). \quad (22)$$

在材料中的电荷包产生之前, 材料内部已有一定的自由电荷分布. 设在 $t = 0$ 时, 阳极附近 $x_p(0)$ 处产生了一个宽度为 Δx_0 的同号电荷 $\Delta\sigma_c$ 积累, $\Delta\sigma_c$ 使得电荷包中的自由电荷密度增大了 $\Delta\sigma_c/\Delta x_0$, 根据 Poisson 方程

$$\frac{\partial E(x, t)}{\partial x} = \frac{n_{c, \text{in}}(x, t) + n_{t, \text{in}}(x, t)}{\varepsilon\varepsilon_0}, \quad (23)$$

$$V = \int_0^d E(x) dx.$$

该电荷层会将材料划分成两个电场不同的区域, 如图 4 所示. 图 4 中上半部分表示材料内的电荷包分布, 实线框为电荷包初始大小, 下半部分为相应的电场分布及迁移速率与电场关系曲线. 电荷包与阳极之间为低场区, 电场为 E_{p1} , 载流子的迁移速率为 V_{p1} , 电荷包与阴极之间为高场区, 电场为 E_{p2} , 载流

子的迁移速率为 V_{p2} , 则进入电荷积累层的电流密度为 $j_1(t)$, 流出电荷积累层的电流密度为 $j_2(t)$. 那么电流连续性方程可写为

$$\begin{aligned} j_2(t) - j_1(t) &= -\frac{\partial \alpha(x_p, t)}{\partial t}, \\ j_1(t) &= n_{c, \text{in}}(x_p, t)V_{p1}, \\ j_2(t) &= n_{c, \text{in}}(x_p + \Delta x_0, t)V_{p2}, \end{aligned} \quad (24)$$

式中 $n_{c, \text{in}}(x_p, t)$ 表示流入电荷包的自由电荷密度, $n_{c, \text{in}}(x_p + \Delta x_0, t)$ 表示流出电荷包的自由电荷密度, 在电荷包产生时, 两者应满足

$$n_{c, \text{in}}(x_p + \Delta x_0, 0) = n_{c, \text{in}}(x_p, 0) + \Delta\sigma_c/\Delta x_0. \quad (25)$$

当内场处于负微分迁移率区域, 即 $E > E_1$ 时, 则 $V_{p1} > V_{p2}$, 由于初始时刻 $\Delta\sigma_c$ 很小, $n_{c, \text{in}}(x_p + \Delta x_0, 0) \approx n_{c, \text{in}}(x_p, 0)$, 所以 $j_1(t) > j_2(t)$, 电荷包的电量将逐渐增大. 电荷量的增加又会加大前后沿的电场差距, 使得电荷积累层两侧电荷迁移速率差进一步增大, 导致电荷包电量的持续增加. 这个过程将一直持续到低场区电场降低到注入阈值场强 E_0 以下. 由注入模型可知, 电极处注入电荷大大减小, 流入电荷包的自由电荷密度迅速降低, 使得注入电流 $j_1(t) \ll j_2(t)$, 电荷包将在电场驱动下以速度 V_{p2} 向阴极

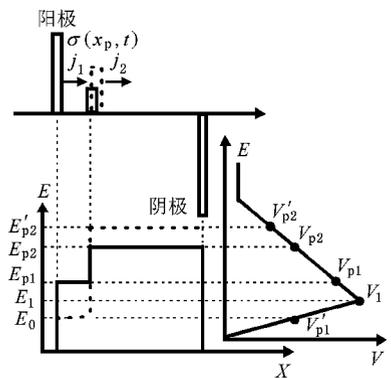


图 4 电荷包的生长过程示意图

在浅阱近似下, 脱陷和入陷电荷很快达到热平衡, 束缚电荷与自由电荷量相比很少, 低场区可以忽略陷阱对传导电流的影响, 流入电荷包自由电荷密度 $j_1(t)$ 与电极注入电流 $j'_0(t)$ 有如下关系:

$$j_1(t) = j'_0(t). \quad (26)$$

在深阱近似下, 电荷被俘获后基本不脱陷, 低场区的电流密度改变量应等于低场区陷阱电荷的增加量, 即

$$j_l(t) - j_0 = \int_0^{x_p} \frac{\partial n_{in}(x, t)}{\partial t} dx. \quad (27)$$

3.2. 空间电荷包的迁移过程

在对不同文献报道的电荷包实验结果进行分析时,我们发现尽管电荷包因材料和所加外场不同而输运行为也不尽相同.较高电场(大于 100 MV/m)下出现的电荷包所带电荷量大,且在迁移过程中逐渐增大,随时间降低,在迁移到样品中的某个位置后停止不动并伴随着样品的击穿^[6].较低场强(50 MV/m)下出现的电荷包,电荷量较低,在迁移过程中逐渐衰减,缓慢降低,一般能做较长迁移并且不发生击穿^[7].产生这种差别的原因可以通过电荷包电荷在迁移过程中与体内陷阱相互作用的过程来说明.

根据 Poole-Frenkel 效应,电场对陷阱势垒的削弱作用随电场增高呈指数增大,若不加外场时材料体内陷阱能级比较浅,施加的较高电场又会进一步降低陷阱对电荷的俘获作用,使得电荷包在移动过程中陷阱俘获的电荷很少且入陷电荷与脱陷电荷能较快达到平衡.这种情况下陷阱对电荷包内电量改变影响较小,空间电荷的迁移情况将可用图 5 说明,图中实线 *abce* 表示迁移前样品内电场分布.电荷包增长到最大后,设经过 Δt 时间电荷包移动了 $\Delta x = v_{i2}\Delta t$,此时样品内电荷及电场分布应如图中虚线所示.由于外加电压不变,所以电荷包后沿场强将高于阈值注入场强 E_0 ,注入电流增强,而在新位置电场仍处于负微分迁移率区,电荷包两侧的速度差会使电荷包继续增长到注入电场降到 E_0 以下,最终材料内电场分布如实线 *ab'c'e'* 所示.一方面,电荷包在新位置达到最大,其电荷量要高于初始位置.另一方面,高场区在电荷包逐渐增大的影响下,内场也不断升高,致使 V_{i2} 随时间下降,在到达饱和电场 E_2 后,迁移速度达到最小 V_2 .当电场已经增强到接近材料的击穿场强时,就发生击穿现象.当材料体内陷阱能级较深且施加到材料上的电场较低时,陷阱势垒降低不明显,电荷被深陷阱俘获后难以脱陷.这种情况下电荷包的迁移情况如图 6 所示,电荷包之间的阴影部分表示迁移过程中被深陷阱俘获的电荷,实线 *abce* 表示迁移前样品内电场分布, *ab* 段的电场上升是由于低场区部分自由电荷在迁移过程中被俘获所致.经过 Δt 时间后电荷包中电荷在移动中会被陷阱俘获一部分,在到达新位置后电荷包所余的电量如图 6 虚线所示.由于陷阱电荷和电荷包电荷共

同作用的结果,使得阳极处注入场强高于注入阈值电场 E_0 .按以上所述,由于流入电荷包的电荷量高于流出电荷包的电荷量,电荷包将在新位置逐渐增长直到阳极注入电场恢复 E_0 为止.这时材料内的电场分布为实线 *abc'e'*,在电极电势差不变的情况下,电荷包带电量仍小于迁移前带电量,在迁移过程

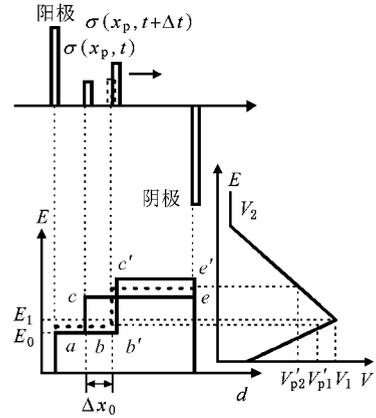


图 5 电荷包的迁移过程(浅陷阱)示意图

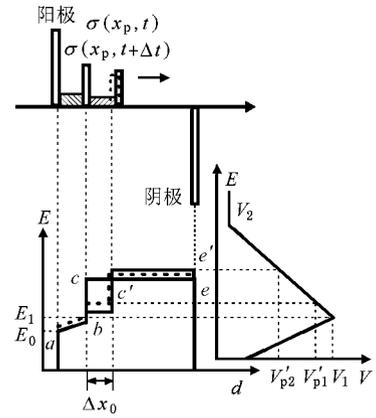


图 6 电荷包的迁移过程(深陷阱)示意图

3.3. 实验结果的仿真

为了检验已建立物理模型的正确性,我们对文献报道的低密度聚乙烯中空间电荷包行为的实验结果进行了模拟.受篇幅所限,用本方法对各种样品进行数值仿真的结果将在后续的论文中作详细报道,本文仅示例说明在高场下的空间电荷包的仿真计算结果.图 7(a)和(b)分别给出了电荷包行为的实验结果和模拟结果.从图 7 可以看到,在外加电场较高、样品内的陷阱能级较低时,模拟电荷包在阳极附

近产生,在迁移过程中逐渐增大,迁移速率随时间减小,在样品中部迁移速率降至最低,电荷包几乎不再

移动.整个迁移过程很好地反映了以上所述的模型,并且也与实验结果完全符合.

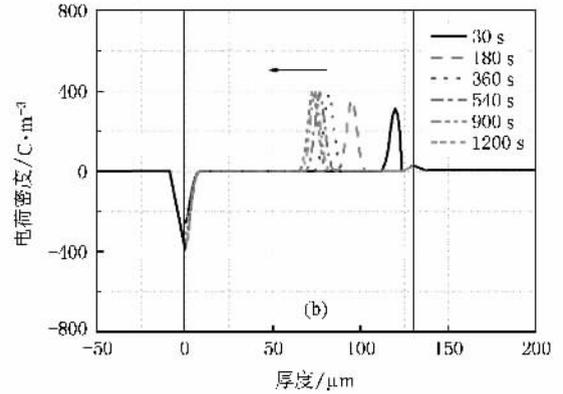
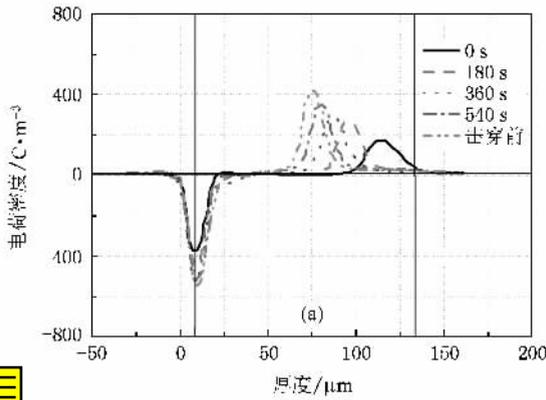


图7 高场下低密度聚乙烯的空间电荷分布 $E = 330 \text{ MV/m}$, $d = 130 \mu\text{m}$ (a)实验结果^[11] (b)模拟结果

4. 结 论

本文研究了聚乙烯材料在强场下的电极注入、体内载流子迁移及陷阱与自由电荷的相互作用等因素对电荷包的迁移行为造成的影响.通过分析得出以下结论(1)空间电荷包的电荷主要来源于电极的不连续注入,而电极处的注入过程满足场限制电荷

模型,使得电荷只有在高于特定阈值电场时才能注入材料内.(2)聚乙烯材料在高场下可能产生的负微分迁移率是造成电荷包中电荷积累的主要原因.(3)体内陷阱与电荷包中自由电荷的相互作用使得电荷包以不同的方式在材料中迁移.以此为基础建立的物理模型不仅可以成功地模拟低密度聚乙烯材料中电荷包行为的演变过程,也能很好反映出外加电场及材料性质导致的电荷包行为差异性.

- [1] Zhang Y W, Lewiner J, Alquie C, Hampton N 1996 *IEEE Trans. Dielect. El. In.* **36** 778
- [2] An Z L, Yang Q, Zheng F H, Zhang Y W 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5502 (in Chinese)[安振连、杨强、郑飞虎、张治文 2007 物理学报 **56** 5502]
- [3] Hozumi N, Suzuki H, Okamoto T 1994 *IEEE Trans. Dielect. El. In.* **5** 82
- [4] See A, Dissado A, Fothergill J C 2001 *IEEE Trans. Dielect. El. In.* **8** 859
- [5] Kon H, Suzuoki Y, Mizutani T, Yoshifuji N 1996 *IEEE Trans. Dielect. El. In.* **3** 380
- [6] Matsui K, Tanaka Y, Takada T, Fukao T, Fukunaga K 2005 *IEEE Trans. Dielect. El. In.* **12** 406
- [7] Zheng F H, Zhang Y W, Gong B, Zhu J W, Wu C S 2005 *Sci. China E* **48** 354
- [8] Zheng F H, Zhang Y W, Wu C S, Li J X, Xia Z F 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1137 (in Chinese)[郑飞虎、张治文、吴长顺、李吉晓、夏钟福 2003 物理学报 **52** 1137]
- [9] Hayase Y, Aoyama H, Matusi K, Tanaka Y, Takada T, Murata Y

2006 *IEEE J. Trans. Fundam. Mater.* **126** 1084

- [10] Kaneko K, Mizutani T 1999 *IEEE Trans. Dielect. El. In.* **6** 152
- [11] Kohei M, Yasuhiro T, Tastuo T, Takashi M 2008 *IEEE Trans. Dielect. El. In.* **15** 841
- [12] Dissado L A, Laurent C, Montanari G C, Morshuis P H F 2005 *IEEE Trans. Dielect. El. In.* **12** 612
- [13] Zeller H R 1990 *Proceeding of Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena* 28—31 Oct 1990 p8
- [14] Jones J P, Llewellyn J P, Lewis T J 2005 *IEEE Trans. Dielect. El. In.* **12** 951
- [15] Allen J W, Shyam M, Chen Y S, Pearson G L 1965 *Appl. Phys. Lett.* **7** 78
- [16] Yang Q, An Z L, Zheng F H, Zhang Y W 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3834 (in Chinese)[杨强、安振连、郑飞虎、张治文 2003 物理学报 **57** 3834]
- [17] Xia Z F 2001 *Electrets* (Beijing: Science Press) p122 (in Chinese) [夏钟福 2001 驻极体(北京:科学出版社)第122页]
- [18] Li Y, Tanaka T 1994 *IEEE Electric. Insul. Mag.* **10** 16

Numerical simulation of space charge packet behavior in low-density polyethylene under direct current voltage *

Xia Jun-Feng¹⁾ Zhang Ye-Wen^{1†} Zheng Fei-Hu¹⁾ Lei Qing-Quan²⁾

1 *Xi Pohl Institute of Solid State Physics, Tongji University, Shanghai 200092, China*

2 *Xi College of Electric and Electronic Engineering, Harbin University of Science and Technology, Harbin 150080, China*

(Received 16 March 2009 ; revised manuscript received 17 April 2009)

Abstract

Packet-like space charge behavior is a kind of special transport behavior of space charge in polyethylene. It has been demonstrated that many factors, such as the intensity of applied field, temperature and material have great influence on the formation and migration of space charge packets. This would cause much difficulty in understanding the general mechanism of the phenomenon. In this paper, on the basis of analysis of charge injection and migration, the interaction between the charge and charge trap and the influence of electric field on charge trap level, a model is proposed to simulate the packet-like space charge behavior. We suppose that there exists a negative differential relationship for the charge velocity against the electric field when the electric field exceeds a threshold value. By considering the negative differential relationship, we simulated various kinds of packet-like charge behaviors and the results of numerical simulation show a good agreement with the experimental results issued by different research groups.

Keywords : packet-like space charge, numerical simulation, negative differential mobility

PACC : 7110, 7750, 7210, 7220J

* Project supported by the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50537040), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50807040) and Shanghai Committee of Science and Technology (Grant No. 07DZ22302).

† Corresponding author. E-mail : yewenzhang@online.sh.cn