J. Inst. Electrostat. Jpn.
論　文
静電気学会誌，**45**, 2（2021）69-74

低密度ポリエチレンの低電界電気伝導に及ぼす密度の影響

－電流積分電荷法による調査－

光本　真一[*, 1]，栗本　宗明[**]，福間　眞澄[***]，藤井　雅之[****]

（2020年3月9日受付；2020年11月6日受理）

Effect of Density on Low-field Electrical Conduction in LDPE

－ Evaluation Using Current Integrated Charge Method －

Shinichi MITSUMOTO[*, 1], Muneaki KURIMOTO[**],
Masumi FUKUMA[***] and Masayuki FUJII[****]

（Received March 9, 2020; Accepted November 6, 2020）

This paper presents the effect of density of LDPE（Low-density polyethylene）on low-field electrical conduction in LDPE film. Densities of LDPE ranging from 0.916 to 0.924 g/cm^3 were studied using Direct Current Integrated Charge method, under the electric fields ranging from 3-120 kV/mm, at the temperatures of 27, 50, 70 and 90 ℃, respectively. The induced potential（V_{int}）across the capacitor（C_{int}）was measured to calculate the integrated charge between the electrodes of the sample. Conduction current was calculated by the derivative of the induced charge Q（$C_{int} \times V_{int}$）by time. It was found that conduction current decreases with increasing density of LDPE under the electric fields of 10-50 kV/mm, at 27 ℃. It hinted that conduction current was suppressed with increasing density of LDPE due to the increasing formed charges in LDPE. It was observed that conduction current was almost constant at the temperatures of 27, 50, 70, and 90 ℃ , when the electric field was below 10 kV/mm. On the other hand, it was also proposed that an existing space charge could be evaluated using a time dependence characteristic of induced charge Q, at the electric fields of below 10 kV/mm.

1. はじめに

交流用電力ケーブルの電気絶縁材料としてポリエチレンが広く用いられているが，エネルギー損失軽減の観点から直流高電圧下で送電を行う高圧直流送電（HVDC）に関連した研究調査が多く報告されている[1, 2]．直流電界下では低密度ポリエチレン（LDPE）中に蓄積する空間電荷[3-5]が局部電界を強調することによって，LDPEの本質的な絶縁破壊の強さよりも低い値で絶縁破壊が発生する可能性がある．このため，LDPEに少量のナノフィラーを添加することによって絶縁特性を向上させる研究が進行している[6, 7]．一方，直流高電圧ケーブルに対して高密度ポリエチレン（HDPE）が検討された報告もある[8]．さらにLDPEの密度が高くなると絶縁破壊の強さが大きくなることも報告されている[9]．これまで報告されている多くのポリエチレンの直流電気伝導測定は，微小電流計を用いて測定された研究[10]であり，測定データが外部ノイズの影響を非常に受けやすいことから，比較的高電界（数十kV/mm以上）領域の測定の報告がほとんどである．このため数kV/mm程度の電界領域におけるLDPEの電流と密度の関係について調べることは実用上重要と考えられるが，ほとんど見当たらない．さらにナノフィラーを添加する研究を向上させるためにも，最近の技術を用いてポリエチレン自身の本質的な電気特性の解明を目指すことは極めて重要であると考えられる．そのため本論文では，電流測定時に外部ノイズの影響が受けにくい電流積分電荷法[11-13]を用いて低密度ポリエチレンの低電界電気伝導特性に及ぼす密度の影響を調べたので報告する．

2. 試料および実験方法

試料は，0.916，0.918，0.921，0.924 g/cm^{3}の4種類の密度のLDPEペレットを厚さ0.17 mm程度のシート状に

キーワード：密度，電気伝導，ポリエチレン，温度変化
* 豊田工業高等専門学校
（〒471-8525　豊田市栄生町 2-1）
National Institute of Technology, Toyota College, 2-1, Eisei, Toyota, Aichi 471-8525, Japan
** 名古屋大学
（〒464-8601　名古屋市千種区不老町）
Nagoya University, Furo, Chikusa, Aichi 464-8601, Japan
*** 松江工業高等専門学校
（〒690-8518　松江市西生馬町 14-4）
National Institute of Technology, Matsue College, 2-1, Nishiikuma, Matsue, Shimane 690-8518, Japan
**** 大島商船高等専門学校
（〒742-2193　山口県大島郡周防大島町大字小松1091番地1）
National Institute of Technology, Oshima College, 1091-1, Komatsu, Oshima, Yamaguchi 742-2193, Japan
[1] mitumoto@toyota-ct.ac.jp
DOI：https://doi.org/10.34342/iesj.2021.45.2.69

プレス成型したものを使用した．これらのLDPEペレットは，添加剤は用いられておらず製造時に分子構造などを制御することで試料密度が調整されている．図1に測定回路の概略図を示す．電極の直径は6 mmであり，高電圧側電極には導電性ゴム，低電圧側電極にはアルミニウムを使用した．試料表面漏れ電流を計測しないようにするため，下部電極側にガード電極を設けてある．直流電源（松定プレシジョン製HAR-60）を用いて，試料へ所定の電圧が印加される際に，積分コンデンサC_{int}に誘起される電圧をエレクトロメータ（アドバンテスト製TR8652）で測定した．電流積分電荷法を利用するため，測定試料の静電容量（約3～4 pF）よりも積分コンデンサC_{int}の静電容量を十分大きく設定した．ここでは積分コンデンサC_{int}は，10 μFおよび1 μFの容量を用いた．電圧は，印加電界が3～120 kV/mmとなるように調整した．本論文では低電界領域（～20 kV/mm）におけるポリエチレンの電気伝導を調べることを主な目的としているが，既報のデータと比較しやすい高電界領域も測定を行った．さらに試料と電極を恒温槽に設置することで周囲温度も変化させた．測定温度は，27，50，70，90 ℃であった．

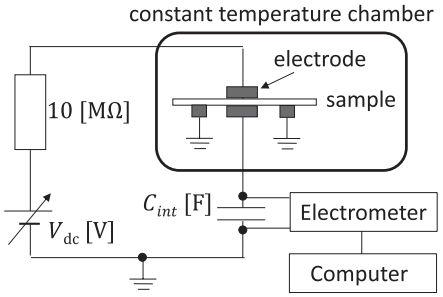

図1　測定回路の概略図
Fig.1　An outline of the experimental system.

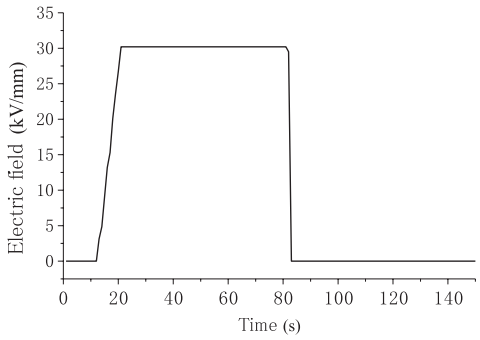

図2　印加電界波形の一例
Fig.2　An example of applied field to the sample.

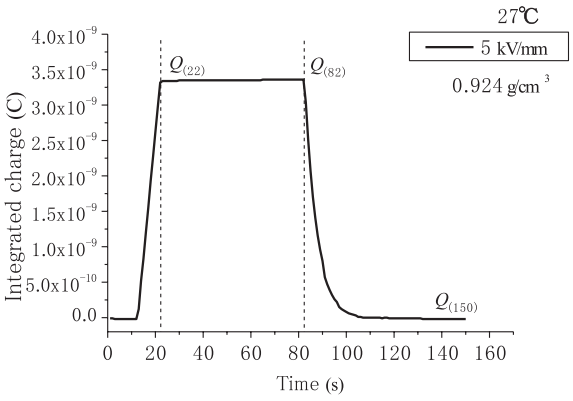

図3　LDPE試料（0.924 g/cm^3）の$Q_{(t)}$波形の一例
Fig.3　An example of time dependence of integrated charge in LDPE with 0.924 g/cm^3 at 27 ℃.

試料へ印加される印加電界波形の一例を図2に示す．図2の印加電界波形において，測定開始から12秒間は電圧印加をせず，その後10秒の時間をかけて所定の電界に上昇させていることがわかる．これは，立ち上がりの急峻な電界が試料に印加した際に，発生する恐れのある部分放電を抑制しているためである．一定電界の時間は60秒間であり，その後，電界を除去した状態で全体の計測時間が150秒となるまで同じ状態を維持した．測定試料の積分電荷量（Integrated charge）$Q_{(t)}$は，1秒毎に計測された積分計C_{int}の誘起電圧V_{int}とC_{int}の静電容量値の積から求めた．27 ℃における0.924 g/cm^{3}試料の$Q_{(t)}$波形の一例を図3に示す．前述のような印加電界波形を試料に印加することで，図3の$Q_{(t)}$波形において22秒から82秒までの60秒間は一定電界（図3においては5 kV/mm）が試料に印加されていることになる．この一定電界下の60秒間において試料を流れる平均電流Iは，22秒の電荷量$Q_{(22)}$および82秒の電荷量$Q_{(82)}$を用いると，次式（1）のようにあらわされる．

$$I = (Q_{(82)} - Q_{(22)})/60 \quad \text{（A）} \tag{1}$$

本論文の全ての電流は上式の計算によって求めた．

3. 実験結果および考察

図4に27℃におけるLDPEの電界－電流特性を示す．この図において，黒印は各試料における電流の平均値を示し，横棒は標準偏差を示す．各点における実験は4回以上実施した．この図から，4 kV/mmから9 kV/mmまでの電界領域においては，各試料の電流値がほとんど重なっていることがわかる．しかし10 kV/mm以上になると試料の電流値に差がみられることがわかる．特に10～50 kV/mmの範囲では，試料の密度が小さいほど電流値が大きくなっている．

図5～7に，50，70および90 ℃におけるLDPEの電界－電流特性をそれぞれ示す．これらの図の全ての電界領域において，電流値は印加電界の上昇とともに増加していることがわかる．しかしながら27 ℃，10～50 kV/mmの範囲で確認されていた電流の密度依存性（密

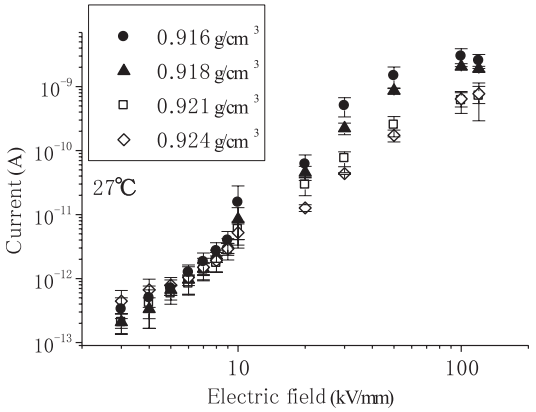

図 4　27 ℃における LDPE の電界－電流特性
Fig.4　Characteristics of current vs. electric field in LDPE with different densitiy at 27 ℃.

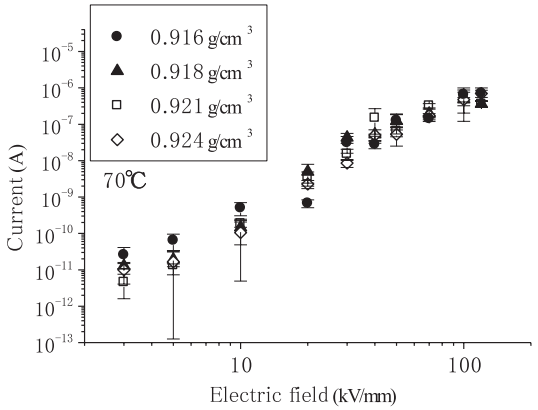

図 6　70 ℃における LDPE の電界－電流特性
Fig.6　Characteristics of current vs. electric field in LDPE with different densitiy at 70 ℃.

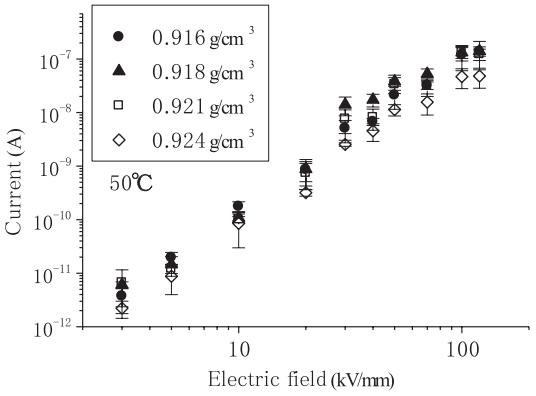

図 5　50 ℃における LDPE の電界－電流特性
Fig.5　Characteristics of current vs. electric field in LDPE with different densitiy at 50 ℃.

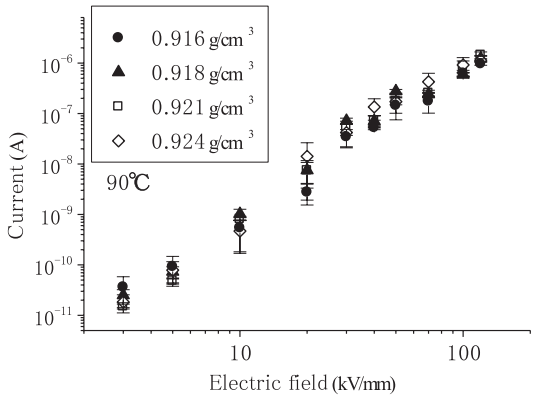

図 7　90 ℃における LDPE の電界－電流特性
Fig.7　Characteristics of current vs. electric field in LDPE with different densitiy at 90 ℃.

度が小さい試料の電流値が大きくなる）は，図 5～7 において必ずしも確認できないことがわかる．半導電電極－ LDPE －アルミ電極系で 10 kV/mm よりも高い電界印加時には，半導電電極が正電極の場合，試料内部に正極性の空間電荷が蓄積されることが報告[14-16]されている．これらの電極系は本論文の電極系と同じであるため，10 kV/mm 以上の電界領域では，半導電電極と同じ極性の電荷が注入され空間電荷を形成していると考えられる．LDPE では，非晶質部分にトラップが多く存在することが指摘されている[17, 18]．また，23 ℃で 50 kV/mm の電界を LDPE へ印加した空間電荷測定から，密度が低い LDPE では電荷が動きやすく，蓄積電荷量が少なくなることが報告[19]されている．さらに印加電界 40 kV/mm のもとで 23，60，90 ℃で測定された空間電荷から，室温時に電極近傍に形成されたホモ電荷は，温度が高くなると空間電荷量が減衰することが確認されており，これは高温時には，室温時よりも電荷移動度が大きくなるため空間電荷の移動，中和がより速く進行する可能性があることが報告[20]されている．

これらの報告を考慮すると，本実験において 10 kV/mm 以上の電界領域において正極性の電荷が注入されるとともに，27 ℃では，密度が高い試料ほど空間電荷が蓄積しやすく，この空間電荷は注入電極に対してホモ電荷として作用するため，電極からの電荷注入が抑制される．このことによって，27 ℃では試料密度が高いほど，電流値が小さくなったと考えられる．さらに温度が 50 ℃以上になると空間電荷蓄積量が減少し，注入電荷抑制の効果が小さくなったため，電流値が試料密度によって変化しなくなったと考えられる．

一方，本論文で注目している低電界領域において，20 kV/mm 以下で複数の LDPE 試料においてほぼオーミックな電流－電圧特性が得られたと報告[21]がある．図 4～7 における 10 kV/mm より低い領域における電流―電界特性の傾きは 27 ℃で 1.53，50 ℃で 1.33，70 ℃で 1.17，90 ℃で 1.29 と比較的 1 に近い．このため，本論文における 10 kV/mm より低い電界領域では，試料内部における空間電荷蓄積の効果が小さいため，試料密度の違いによって電流の大きさにほとんど違いがみられなか

ったのではないかと考えられる．

次に，積分コンデンサを用いて計測された $Q_{(t)}$ 波形の実験結果の確認を行う前に，$Q_{(t)}$ 波形で得られる基本的な情報についてモデル図を用いて述べる（図8）．

矩形波電圧（図8(a)）を各素子に印加した場合の $Q_{(t)}$ 波形（積分コンデンサ C_{int} で計測される積分電荷量 $Q_{(t)}$ の時間特性）のモデルを図8に示す．矩形波電圧が抵抗 R に印加された場合，一定電流が流れるため積分コンデンサに一定の割合で $Q_{(t)}$ の増加がみられ電圧印加がなくなるとともに，$Q_{(t)}$ の増加が停止する（図8(b)）．矩形波電圧がコンデンサに印加される場合，充電電荷 $Q_{(t)}$ の上昇がみられる（図8(c)）．一般に，高分子絶縁材料（誘電体コンデンサ）はRC並列の等価回路として考えられている[22]ため，高分子材料に矩形波電圧が印加される場合の $Q_{(t)}$ 波形は図8(b)と図8(c)が加算された図8(d)となる．ここで，電圧印加によって高分子絶縁材料試料内部に空間電荷が蓄積されない場合は，電流積分電荷法によって得られる $Q_{(t)}$ 波形において $Q_{t1} = (Q_{t2} - Q_{t3})$ となると考えられる．つまり Q_{t3} の時間変化がほとんどみられない条件のもとで Q_{t1} の大きさと（$Q_{t2} - Q_{t3}$）の大きさの差が大きく異なる場合は，試料内部に空間電荷が蓄積されている可能性があると考えられる．

27，50，70℃および90℃のLDPE試料（密度0.921 g/cm^3）の $Q_{(t)}$ 波形（E ≧ 30 kV/mm）を図9～12に示す．

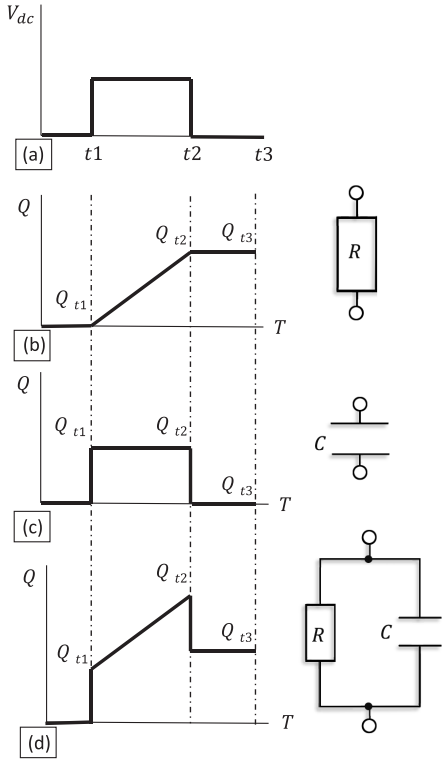

図8　各素子に対する矩形波印加時の $Q_{(t)}$ 波形
Fig.8　Shematic diagram of charactristics of integrated charge.

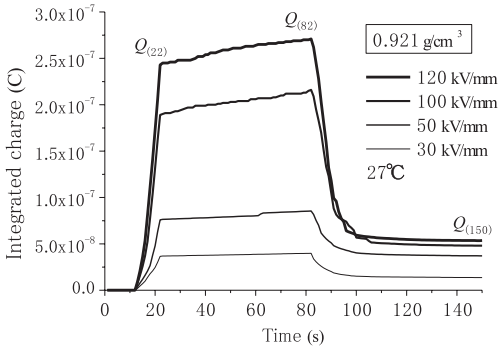

図9　27℃のLDPE試料（0.921 g/cm^3）の $Q_{(t)}$ 波形
Fig.9　Time dependence of integrated charge in LDPE with 0.921 g/cm^3 at 27 ℃（E ≧ 30 kV/mm）.

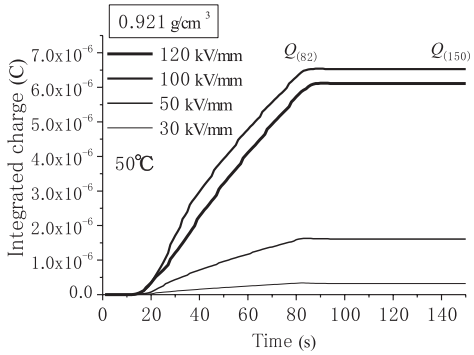

図10　50℃のLDPE試料（0.921 g/cm^3）の $Q_{(t)}$ 波形
Fig.10　Time dependence of integrated charge in LDPE with 0.921 g/cm^3 at 50 ℃（E ≧ 30 kV/mm）.

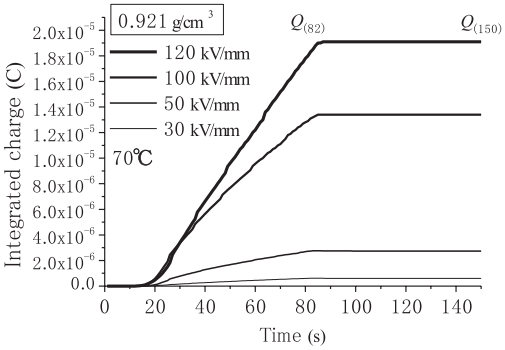

図11　70℃のLDPE試料（0.921 g/cm^3）の $Q_{(t)}$ 波形
Fig.11　Time dependence of integrated charge in LDPE with 0.921 g/cm^3 at 70 ℃（E ≧ 30 kV/mm）.

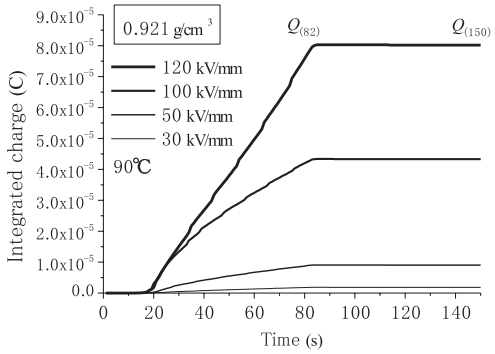

図12　90℃のLDPE試料（0.921 g/cm^3）の $Q_{(t)}$ 波形
Fig.12　Time dependence of integrated charge in LDPE with 0.921 g/cm^3 at 90 ℃（E ≧ 30 kV/mm）.

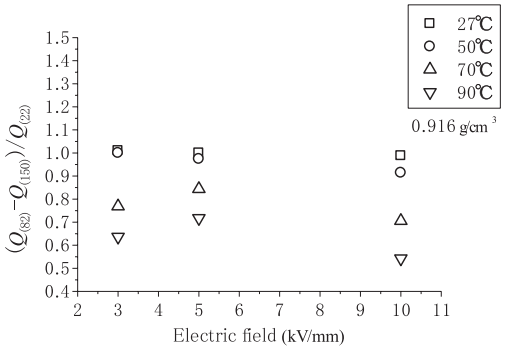

図 13　（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）/ $Q_{(22)}$の電界特性（0.916 g/cm^3）
Fig.13　Electric Field dependence of（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）/ $Q_{(22)}$ with 0.916 g/cm^3（E ≦ 10 kV/mm）.

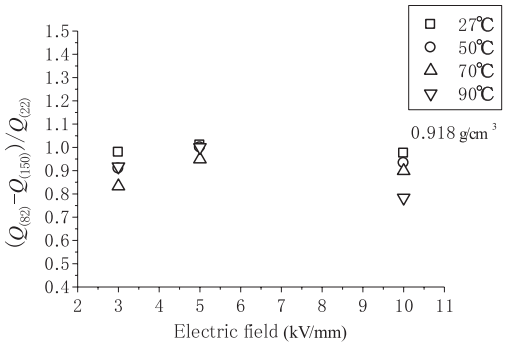

図 14　（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）/ $Q_{(22)}$の電界特性（0.918 g/cm^3）
Fig.14　Electric Field dependence of（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）/ $Q_{(22)}$ with 0.918 g/cm^3（E ≦ 10 kV/mm）.

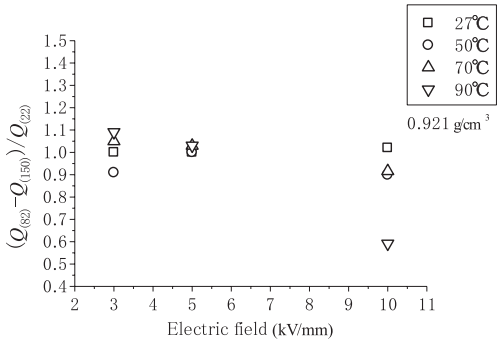

図 15　（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）/ $Q_{(22)}$の電界特性（0.921 g/cm^3）
Fig.15　Electric Field dependence of（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）/ $Q_{(22)}$ with 0.921 g/cm^3（E ≦ 10 kV/mm）.

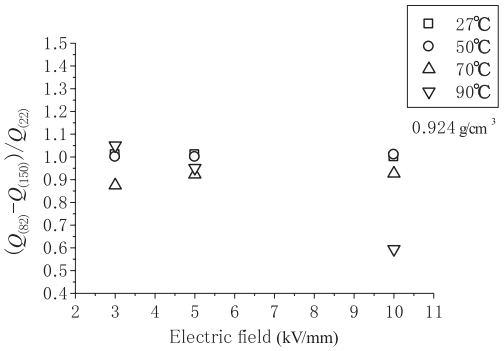

図 16　（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）/ $Q_{(22)}$の電界特性（0.924 g/cm^3）
Fig.16　Electric Field dependence of（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）/ $Q_{(22)}$ with 0.924 g/cm^3（E ≦ 10 kV/mm）.

本実験において，前述の $t1$，$t2$，$t3$ はそれぞれ 22，82，150 s である．

これらの図から，次のことが確認できる．27 ℃の $Q_{(t)}$波形において，電気伝導に寄与した総電荷 $Q_{(82)}$ は電圧除去後に大きく減衰し測定終了時の $Q_{(150)}$ へ達している．しかしながら，50，70，90 ℃の場合，総電荷 $Q_{(82)}$ は電圧除去後から $Q_{(150)}$ に至るまでほとんど変化していないことがわかる．電流積分電荷法による電荷測定において電圧除去後に過渡的減衰を経て，試料内部に空間電荷がほとんど消滅した状態で安定に残留する積分コンデンサ電荷量（本測定の $Q_{(150)}$）は，図 8 のモデル図における抵抗成分を移動した電荷量とみなすことができるため，これらは電極からの注入電荷量に関係していると考えられる．また LDPE の 90 ℃の外部回路電流のほとんどが空間電荷による変位電流ではなく伝導電流であることも報告[23] されている．また，この場合の試料内に形成されている空間電荷量は $Q_{(150)}$ に比べて極めて小さいと推測される．

27 ℃，50 kV/mm に注目すると，$Q_{(22)}$ が 7.59×10^{-8} C（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）が 4.82×10^{-8} C のように両者の値が大きく異なっていることから，電圧除去後において試料内部に残留空間電荷が存在している可能性が考えられる．

10 kV/mm 以下の $Q_{(t)}$波形（E ≦ 10 kV/mm）を用いて，（$Q_{(82)}$—$Q_{(150)}$）を $Q_{(22)}$で除した値を縦軸，印加電界を横軸にし，試料密度毎にプロットしたものを図 13～16 に示す．これらの図の縦軸の値が 1 に近い場合，試料内部に空間電荷が蓄積されていない可能性が考えられる．これらの図においてほとんどの場合，縦軸の値が 1 に近くなっていることから，10 kV/mm 以下の電界領域では空間電荷蓄積の可能性は低いことが考えられる．仮に空間電荷蓄積の可能性がある閾値を 0.8 とすると，0.918，0.921，0.924 g/cm^3 の試料において 90 ℃，10 kV/mm の場合，さらに 0.916 g/cm^3 の試料においては，70 ℃以上，3，5，10 kV/mm 印加時に電気伝導に影響を及ぼさない程度の微量な空間電荷蓄積があるかもしれない．しかし空間電荷分布確認のためには高温かつ低電界印加時における空間電荷分布測定技術が必要となるため，今後の課題としたい．このように電流積分電荷法で得られる $Q_{(t)}$ 波形の初期充電電荷量と電圧除去後の減衰電荷量を比較することで，低電界印加時における試料内部の空間電荷蓄積の有無を推定できる可能性がある．

4. まとめ

本論文では，電流積分電荷法を用いて低密度ポリエチレンの主として低電界電気伝導特性に及ぼす密度の影響

を調べた．その結果，以下のことが明らかとなった．

(1) 27℃における LDPE の電界－電流特性では，4 kV/mm から 9 kV/mm までの電界領域においては，試料密度によらず電流値がほとんど同じであった．しかし 10 kV/mm から 50 kV/mm の範囲では，試料の密度が小さいほど電流値が大きくなっていた．

(2) 50 ℃，70 ℃および 90 ℃における LDPE の電界－電流特性では，27 ℃の 10 kV/mm から 50 kV/mm の範囲で確認されていた電流の密度依存性（密度が小さい試料の電流値が大きくなる）は，必ずしも確認できなかった．

(3) 30 kV/mm 以上の電界領域において 27 ℃における $Q_{(t)}$ 波形において，積分電荷量は電圧除去後に大きく減衰した．しかしながら，50 ℃，70 ℃，90 ℃の場合，総電荷量は電圧除去後にほとんど変化がみられなかった．

(4) 10 kV/mm 以下の電界および 50 ℃以下で一定電界印加時に積分コンデンサに蓄積された電荷量と電圧除去後に減衰した電荷量の大きさは，試料密度に関わらず同程度であった．

このことから，30 kV/mm 以上においては周囲温度が高くなると伝導に寄与した電荷は試料を通過できる可能性があることと 10 kV/mm 以下で 50 ℃以下の条件では，密度に関わらず空間電荷の蓄積が少ない可能性があることが $Q_{(t)}$ 波形の概形を用いて考えられた．

本研究の一部は科研費（18K04120）（17H04917）の援助を受けて行われた．

参考文献

1）田中愁佳夫，川原昭人，三瓶雅俊：紀伊水道直流 500kV 連系プロジェクトに見る最先端技術－変換所機器編－．電気学会論文誌 A，**120**［11］（2000）959

2）関口洋逸：送電ケーブル用絶縁材料の歴史と最近の動向．電気学会論文誌 A，**139**［9］（2019）400

3）星村義一：トルマリン添加低密度ポリエチレン樹脂の空間電荷測定．静電気学会誌，**27**［1］（2003）39

4）名久井孝四，板橋和仁，野村正道，關井康雄，前野　恭：低密度ポリエチレン及び架橋ポリエチレン中の空間電荷分布に及ぼす添加剤の影響．電気学会論文誌 A, **119**［12］（1999）1459

5）今　博之，鈴置保雄，水谷照吉，鈴木建哉：レーザ誘起圧力パルス法による電力ケーブル絶縁用ポリエチレン中の空間電荷挙動の検討酸化防止剤の効果．電気学会論文誌 A，**114**［3］（1994）243

6）栗本宗明，田中知明，村上義信，片山知彦，山崎孝則，村田義直，穂積直裕，長尾雅行：MgO/LDPE ナノコンポジットの耐水トリー性．電気学会論文誌 A, **134**［3］（2014）142

7）石本和之，田中祀捷，大木義路，関口洋逸，村田義直：MgO ナノフィラー添加による LDPE への電荷注入の抑制．電気学会論文誌 A，**128**［12］（2008）742

8）神永建二，武田直樹，片貝昭史，村田義直，金岡　護，高橋憲司：ケーブル絶縁材料の直流破壊現象．電気学会論文誌 A，**117**［1］（1997）42

9）森　竜雄，バンモンコンチャナロン，水谷照吉，石岡貢，石野　巌：高温領域における高電界特性と LDPE の物性－ I．フィルム密度からの再検討－．電気学会論文誌 A，**117**［3］（1997）305

10）釣本崇夫，長尾雅行，櫻井　潤，水野幸男，小崎正光：低密度ポリエチレンフィルムの局所発熱現象に及ぼす熱処理及び延伸の影響．電気学会論文誌 A, **116**［2］（1996）163

11）藤富寿之，森　琢磨，岩田知之，小野泰貴，三宅弘晃，田中康寛，高田達雄：ガンマ線照射電線ケーブルの絶縁劣化特性の高電圧側・電流積分電荷量による評価．電気学会全国大会，2-57 p.69（2016）

12）美馬まいみ，花澤大樹，土方規実雄，三宅弘晃，田中康寛，高田達雄，井上　隆：パワーモジュール絶縁層の電荷蓄積の電流積分電荷法による評価．電気学会論文誌 A，**139**［4］（2019）197

13）藤井雅之，山田真宜，福間眞澄，村上義信，長尾雅行：不平等電界下の空間電荷分布の変化とエポキシ樹脂の絶縁劣化．電気学会論文誌 A，**137**［11］（2017）608

14）越智亮平，尾崎良太郎，門脇一則：階段状直流昇圧過程における低密度ポリエチレン中の空間電荷蓄積および伝導電流の変化．電気学会論文誌 A，**136**［11］（2016）717

15）村上義信，光本真一，福間眞澄，穂積直裕，長尾雅行：ポリエチレンと半導電電極の界面状態が空間電荷と絶縁破壊に及ぼす影響．電気学会論文誌 A，**120**［10］（2000）930

16）今　博之，鈴置保雄，水谷照吉，重次浩樹：レーザ誘起圧力パルス法による電力ケーブル絶縁用ポリエチレン中の空間電荷挙動の検討半導電層との界面と酸化防止剤の影響．電気学会論文誌 A，**115**［6］（1995）511

17）家田正之，鈴置保雄，水谷照吉：高分子材料のキャリヤトラップ．高分子論文集，**36**［10］（1979）671

18）天川清士，犬石嘉雄：酸化および未酸化ポリエチレンの熱刺激電流．電気学会論文誌，**93**［12］（1973）533

19）新村健太，水谷照吉，兼子一重，張　潮，森　竜雄，石岡　貢：異なる低密度ポリエチレン界面の空間電荷挙動．電気学会論文誌 A，**122**［3］（2002）322

20）会田二三夫，汪　士楠，藤田道朝，谷本　元：ポリエチレン中の空間電荷挙動－水分と温度による影響－．電気学会論文誌 A，**117**［9］（1997）922

21）田中康寛，田中貞嗣，大木義路：低密度ポリエチレン中の不純物が空間電荷形成挙動に与える影響．電気学会論文誌 A，**113**［8］（1993）598

22）犬石嘉雄，中島達二，川辺和夫，家田正之：誘電体現象論．電気学会，（1993）90

23）福間眞澄，和田守美穂，長尾雅行，小崎正光，河野唯通，前野　恭：LDPE フィルムの絶縁破壊発生までの過渡的空間電荷と外部回路電流の同時測定．電気学会論文誌 A，**121**［4］（2001）338