

**Untersuchungen zur Zustandsbewertung von
in Hochspannungskabeln eingesetzten
Isolierungen aus vernetztem Polyethylen**

Von der Fakultät für Elektrotechnik und Informatik der
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover zur
Erlangung des akademischen Grades

**Doktor-Ingenieur
(Dr.-Ing.)**

genehmigte

Dissertation

von

Dipl.-Ing. Mark Reuter
geboren am 12.10.1972 in Langenhagen

2008

Vorsitzender der Prüfungskommission:	Prof. Dr.-Ing. A. Mertens
1. Referent:	Prof. Dr.-Ing. E. Gockenbach
2. Referent:	Prof. Dr.-Ing. A. Schnettler
3. Referent:	Prof. Dr.-Ing. habil. H. Borsi
Tag der Promotion:	18.04.2008

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Energieversorgung und Hochspannungstechnik, Fachgebiet Hochspannungstechnik (Schering-Institut) der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr.-Ing. Ernst Gockenbach für die Anregung zu dieser Arbeit, deren großzügige Förderung sowie die Schaffung einer sehr angenehmen und vielfältigen Arbeitsatmosphäre am Schering-Institut. Seine persönliche Art, sein Vertrauen und seine Diskussionsbereitschaft haben zum erfolgreichen Abschluss der Arbeit wesentlich beigetragen.

Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. Hossein Borsi danke ich für die Übernahme des Koreferats sowie für seine Bereitschaft zum wissenschaftlichen Diskurs. Herrn Prof. Dr.-Ing. Armin Schnettler danke ich sehr herzlich für sein Interesse an meiner Arbeit, den Austausch auf einigen DFG-Kolloquien sowie die Übernahme des Koreferats. Bei Herrn Prof. Dr.-Ing. Axel Mertens bedanke ich mich für die angenehme Leitung durch das Prüfungsverfahren.

Mein herzlicher Dank gilt ferner den Herren Dr.-Ing. Jürgen Gärtner und Dr.-Ing. Ralf Kotte, die jederzeit Anteil an meiner Arbeit nahmen und durch ihre Diskussionsbereitschaft eine stetige Hilfe gewährten, die sich nicht nur auf ausschließlich fachliche Bereiche beschränkte.

Ich möchte mich ganz herzlich bei Herrn Dr.-Ing. Matthias Krins dafür bedanken, dass er mich zur Aufnahme dieser Arbeit ermuntert hat. Sein permanentes Interesse am Fortgang der Arbeit sowie Erfahrungen aus gemeinsamen Konferenzbesuchen haben meinen Blick auf besondere Fragestellungen auf dem Gebiet der Hochspannungstechnik gelenkt. Ich danke ihm sehr für die zeitaufwendige Durchsicht des Manuskripts.

Weiterhin möchte ich mich bei allen Kollegen und Mitarbeitern des Schering-Instituts – besonders aus der Werkstatt und dem Sekretariat – für die eingeräumte Unterstützung bedanken. Ebenso danke ich allen Studenten, die als wissenschaftliche Hilfskräfte sehr engagiert und über einen längeren Zeitraum an dem Forschungsprojekt mitgewirkt haben.

Ich danke der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Förderung der Arbeit im Rahmen des Schwerpunktprogramms „Zustandsbewertung von Betriebsmitteln und Anlagen der elektrischen Energieversorgung“.

Schließlich gilt mein ganz herzlicher Dank meiner Familie, die mich stets selbstlos in allen Bereichen während meines Studiums und meiner Arbeit am Schering-Institut unterstützte und mit ihrem Vertrauen eine wesentliche Grundlage für die Durchführung dieser Arbeit geschaffen hat.

Berlin, im April 2008
Mark Reuter

Inhaltsverzeichnis

Verzeichnis verwendeter Abkürzungen und Formelzeichen	VII
Kurzfassung	XI
Abstract	XII
Übersicht	1
Einleitung	2
1 Alterungsmechanismen von Polymerisierungen für Hochspannungskabel	7
1.1 Grundlegender Aufbau von vernetztem Polyethylen (VPE).....	7
1.1.1 Herstellung, Formulierung und Einsatz von VPE in Kabelanlagen	7
1.1.2 Kenndaten des verwendeten Modellkabels	15
1.2 Alterungsrelevante Faktoren und deren Wirkung auf den Isolationszustand von VPE ..	17
1.2.1 Raumladungen.....	18
1.2.2 Nanometrische Hohlraumbildung	20
1.2.3 Thermisch-oxidative Polymerdegradation	24
2 Charakterisierung und Zustandsbewertung von VPE-isolierten Kabeln	27
2.1 Elektrische und dielektrische Verfahren	27
2.1.1 Zerstörende Verfahren	27
2.1.1.1 Restfestigkeitsprüfung	28
2.1.1.2 Raumladungsmessung	28
2.1.2 Zerstörungsfreie Verfahren	30
2.1.2.1 Dielektrische Spektroskopie	30
2.1.2.2 Teilentladungsmessung	31
2.2 Nicht elektrische Verfahren	33
2.2.1 Positronen-Annihilations-Spektroskopie (PAS).....	33
2.2.2 Transmissionselektronenmikroskopie (TEM).....	34
3 Experimentelle Untersuchungen und deren theoretische Grundlagen	36
3.1 Laboralterung von VPE-isolierten Kabeln	36
3.1.1 Versuchsanlagen	38
3.1.2 Alterungsprogramm	39
3.2 Bestimmung der elektrischen Anfangs- und Restfestigkeit	40
3.2.1 Versuchsaufbau und -durchführung	40
3.2.2 Auswertung und Ergebnisdarstellung	42
3.3 Dielektrische Spektroskopie im Zeitbereich	44
3.3.1 Isotherme Depolarisation (ITD)	44
3.3.1.1 Versuchsaufbau und -durchführung	46
3.3.1.2 Variation charakteristischer Umgebungsparameter	50
3.3.1.3 Auswertung und Ergebnisdarstellung	51
3.3.2 Thermisch stimulierte Depolarisation (TSD)	53
3.3.2.1 Versuchsaufbau und -durchführung	57
3.3.2.2 Variation charakteristischer Versuchsparameter	60
3.3.2.3 Auswertung und Ergebnisdarstellung	61
3.4 Dielektrische Spektroskopie im Frequenzbereich	62
3.4.1 Versuchsaufbau und -durchführung	67
3.4.2 Auswertung und Ergebnisdarstellung	68
3.5 Physikalische Analyse von VPE	68
3.5.1 Magnetische Kernresonanz (NMR)	69
3.5.1.1 Versuchsaufbau und -durchführung	73
3.5.1.2 Auswertung und Ergebnisdarstellung	77
3.5.2 FTIR-Spektroskopie.....	78

3.5.2.1	Versuchsaufbau und -durchführung	81
3.5.2.2	Auswertung und Ergebnisdarstellung	82
3.5.3	Dichtemessung	85
3.5.3.1	Versuchsaufbau und -durchführung	86
3.5.3.2	Auswertung und Ergebnisdarstellung	87
4	Darstellung und Diskussion der Versuchsergebnisse	88
4.1	Anfangsfestigkeit des untersuchten Modellkabels	88
4.2	Restfestigkeitsverhalten gealterter VPE-isolierter Modellkabel	90
4.2.1	Einfluss der Alterungstemperatur und der -feldstärke	91
4.2.2	Einfluss der Alterungsdauer	95
4.3	Verhalten charakteristischer Kennwerte von isothermen Depolarisations- stromverläufen	96
4.3.1	Einfluss der Alterungstemperatur, der -feldstärke und der -dauer	96
4.3.2	Einfluss der Umgebungsbedingungen	104
4.4	Thermisch stimuliertes Depolarisationsverhalten von VPE-isolierten Kabeln	106
4.4.1	Einfluss der Alterungstemperatur und der -feldstärke	107
4.4.2	Einfluss der Alterungsdauer	110
4.5	Dielektrische Spektroskopie von VPE-isolierten Kabeln im Frequenzbereich	112
4.5.1	Einfluss der Alterungstemperatur und der -feldstärke	112
4.5.2	Einfluss der Alterungsdauer	115
4.6	Einfluss verschiedener Vorbeanspruchungen auf die physikalische Analyse von VPE	119
4.6.1	NMR-Untersuchungen	119
4.6.2	FTIR-Spektroskopien	122
4.6.3	Dichtemessungen	129
5	Wissenschaftliche Visualisierung spärlich verteilter 3D-Daten aus Untersuchungen an laborgealterten VPE-isolierten Kabeln	132
5.1	Flächen- und Volumendarstellung	132
5.1.1	Polygonale Oberflächennetze	133
5.1.2	Freiformflächen	134
5.1.3	„scattered data modelling“	138
5.1.3.1	<i>Shepard</i> -Verfahren	139
5.1.3.2	<i>Delaunay</i> -Triangulation	140
5.1.3.3	Radiale Basisfunktionen (RBF)	144
5.1.4	Visualisierung von Volumina	149
5.2	Datenstruktur und Arbeitsweise des Modellierungsverfahrens	152
5.2.1	Einfluss frei wählbarer Gleichungsparameter auf die Genauigkeit von multivariaten Approximationen mit RBF	153
5.2.2	Einfluss des RBF-Typs auf die Glattheit von Flächenformulierungen spärlich verteilter Daten	155
5.2.3	Bestimmung von Volumendarstellungen auf der Basis von Flächenformulierungen	156
5.3	Anwendung des Modellierungsverfahrens am Beispiel von Versuchsdaten aus elekt- rischen Restfestigkeitsuntersuchungen	160
5.3.1	Experimentelle Daten bis $t_a \leq 5000$ h mit zusätzlich interpolierten Werten bis $t_a \leq 5000$ h	160
5.3.2	Experimentelle Daten bis $t_a \leq 8760$ h mit zusätzlich interpolierten Werten bis $t_a \leq 10$ a	161
	Zusammenfassung	164
	Schrifttum	170

Verzeichnis verwendeter Abkürzungen und Formelzeichen

Abkürzungen

3D	dreidimensional
A/D	Analog / Digital
AC	netzfrequente Wechselspannung
BDS	breitbandige dielektrische Spektroskopie
BWE	Bundesverband für Windenergie e. V.
CPMG	<i>Carr, Purcell, Meiboom, Gill</i>
EBA	Ethylen-Butyl-Acrylat
EEA	Ethylen-Ethyl-Acrylat
EPR	„ethylene propylene rubber“
FTIR	Fourier-Transform-Infrarot
Gew.-%	Gewichtsprozent
HF	Hochfrequenz
IR	Infrarot
KST	Konstantspannungstest
LDPE	„low-density polyethylene“
LI	Blitzstoßspannung
NaN	„not a number“
NMR	„nuclear magnetic resonance“
NURBS	„non-uniform rational B-Spline“
PAS	Positronen-Annihilations-Spektroskopie
PE	Polyethylen
RBF	radiale Basisfunktion
TE	Teilentladung
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
VPE	vernetztes Polyethylen
VRML	„virtual reality modeling language“

Formelzeichen

A	längere Ellipsen-Halbachse, Streuparameter „slope“
A	spektrales Absorptionsmaß bzw. Extinktion
A_{Peak}	Fläche unterhalb der TSD-Hüllkurve
AV_{rel}	relatives Amplitudenverhältnis
b_j	Kontrollpunkte im \mathfrak{R}^d
B_0	statisches Polarisationsmagnetfeld
B_1	Hochfrequenzmagnetfeld
$B_{i,n}(u)$	Polynom mit <i>Bernstein</i> -Basis
C	„shape parameter“
C'	spezifische Kapazität
C_0	geometrische Kapazität
C_p	Prüflingskapazität
E	elektrische Feldstärke

$E(t)$	harmonisches elektrisches Wechselfeld
E_0	Betriebsfeldstärke
E_a	Alterungsfeldstärke
E_D	Durchschlagfeldstärke
E_F	Formierfeldstärke
E_{KST}	elektrische Festigkeit im Konstantspannungstest
E_{RF}	elektrische Restfestigkeit
E_S	Stehspannungsfestigkeit
f_{Lamor}	Lamorfrequenz
f_k	Ordinaten
$F(x, y)$	bivariate Oberfläche
$I_{Depol.}$	Depolarisationsstrom
I_H	Heizstrom
$I_{max.}$	Stromwert der maximalen TSD-Stromintensität
I_{OL}	Oberflächenleckstrom
I_P	Prüflingsstrom
I_{TSD}	thermisch stimulierter Depolarisationsstrom
I_V	Strom durch das Isolierstoffvolumen
k	<i>Boltzmann</i> -Konstante
K	aus der Elektrodengeometrie ermittelter Korrekturfaktor
l_p	Pulslänge
$L_k(x, y)$	lokale Approximanten
m_u	Ordnung einer NURBS-Fläche in u -Richtung
m_v	Ordnung einer NURBS-Fläche in v -Richtung
n	Grad
N	Anzahl der zu interpolierenden Punkte / der verwendeten RBF
$N_{i,m}(u)$	allgemeine Basisfunktionen
N_{scan}	„scan“-Anzahl
P_0, \dots, P_n	Kontrollpunkte
$P(t)$	harmonische Materialpolarisation
$Q(u, v)$	Tensorproduktfläche, NURBS-Fläche
R	Ellipsen-Spitzenradius
R_1, R_2	Widerstände für ohmschen Spannungsteiler
r_a	Außenradius
r_i	Innenradius
R_L, R_K, R_M	Dämpfungswiderstände für Schaltzustände Ladung, Kurzschluss, Messung
$s(x_k)$	glatte Funktion
$S(u)$	Verlauf einer <i>Bézier</i> -Kurve
T	absolute Temperatur
t	Zeit
T_1	longitudinale Relaxationszeit
T_2	transversale Relaxationszeit
$T_{2, eff.}$	effektive transversale Relaxationszeit
$T_{2, kurz}$	charakteristische transversale Relaxationszeit kristalliner Bereiche
$T_{2, lang}$	charakteristische transversale Relaxationszeit amorpher Bereiche
t_a	Alterungsdauer
$\tan \delta$	dielektrischer Verlustfaktor

$\tan \delta_L$	dielektrischer Verlustfaktor aufgrund von Trägerleitung
$\tan \delta_P$	dielektrischer Verlustfaktor durch Polarisations-effekte
$\tan \delta_{TE}$	dielektrischer Verlustfaktor durch Ionisationsvorgänge
t_E	Echozeit
T_g	Glasübergangstemperatur der amorphen Bereiche (Glastemperatur)
t_K	Kurzschlusszeit
$t_{\text{Krist.}}$	Kristallisationszeit
t_L	Ladedauer
t_M	Messdauer
T_m	Kristallitschmelztemperatur
$T_{\text{max.}}$ bzw. $v_{\text{max.}}$	Temperaturwert der maximalen TSD-Stromintensität
t_t	Verweildauer von Ladungsträgern in „traps“
u_i	Knoten
U	Spannung
U_D	Durchschlagspannung
U_L	Ladespannung
U_N	Nennspannung
U_P	Prüflingsspannung
U_S	Stehspannung
w	Isolierwandstärke
W	Energie
W_A	Aktivierungsenergie
W_M	energetische Mobilitätsbarriere
W_t	energetische „trap“-Tiefe
x_i	fehlerbehaftete Messgröße
Δx_i	Fehler der Messgröße x_i
$\Delta y, F_{\text{int.}}$	Interpolationsfehler nach <i>Gauß</i> scher Fehlerfortpflanzung
$\ x\ $	euklidische Norm
α	Kristallinitätsgrad
ϵ	Permittivität
ϵ_0	Permittivität des Vakuums
ϵ_r	Permittivitätszahl
$\epsilon_r'(\omega)$	Realteil der komplexen Permittivitätszahl
$\epsilon_r''(\omega)$	Imaginärteil der komplexen Permittivitätszahl
$\underline{\epsilon}_r(\omega)$	komplexe Permittivitätszahl
ϕ	positiv definite Funktion im \mathfrak{R}^d
η_A	Ausnutzungsfaktor
η_F	Feldüberhöhungsfaktor
$\varphi(r_k)$	univariate Funktion (radiale Basisfunktion)
κ_∞	stationäre Komponente der spezifischen Gleichstromleitfähigkeit
λ	Wärmeleitfähigkeit
ν	Wellenzahl
ν_0	Fluchtfrequenz
ϑ	Temperatur
ϑ_a	Alterungstemperatur
ϑ_F	Formiertemperatur

ϑ_L	Leitertemperatur
ϑ_U	Umgebungstemperatur
θ	Orientierungswinkel
ρ	Dichte
$\rho_{\text{aq. dest.}}$	Dichte von destilliertem Wasser
ρ_a	ideale Dichte der amorphen Phase
ρ_k	ideale Dichte der kristallinen Phase
σ	spezifischer Oberflächenwiderstand
τ_i	Relaxationszeitkonstante einzelner Exponentialglieder
ω	Kreisfrequenz
ω_i	Gewichte
$\omega_k(x, y)$	Gewichtsfunktion
$\chi(\omega)$	komplexe Suszeptibilität
$\chi'(\omega)$	Realteil der komplexen Suszeptibilität
$\chi''(\omega)$	Imaginärteil der komplexen Suszeptibilität

Kurzfassung

Untersuchungen zur Zustandsbewertung von in Hochspannungskabeln eingesetzten Isolierungen aus vernetztem Polyethylen

Schlagworte: Zustandsbewertung – Alterung – Hochspannungskabel – VPE – dielektrische Spektroskopie – magnetische Kernresonanz – Wechselwirkung – wissenschaftliche Visualisierung – radiale Basisfunktionen

Die vorliegende Arbeit berichtet über experimentelle Untersuchungen mit diagnostischen Verfahren zur Zustandsbewertung von Energiekabeln mit einer Isolierung aus vernetztem Polyethylen (VPE), wie sie für Kabelkonstruktionen im Hoch- und Höchstspannungsbereich verwendet wird, und stellt einen neuartigen Ansatz zur Modellierung von Lebensdauervolumina auf der Basis diagnostischer Kennwerte vor. Die Ergebnisse tragen zum Verständnis von synergetischen Effekten bei gleichzeitiger elektrischer und thermischer Alterungsbeanspruchung bei und zeigen für eine Zustandsbewertung von VPE-isolierten Hochspannungskabeln nutzbare Kenngrößen auf, deren Extrapolation auf zukünftig zu erwartende Werte mit Hilfe des präsentierten Modellierungsverfahrens vorgenommen und ständig verifiziert werden kann.

Die Versuche wurden unter Verwendung eines VPE-isolierten Modellkabels durchgeführt, das bezüglich des Herstellungsprozesses und der Materialeigenschaften einem Hochspannungskabel aktueller Technologie gleicht. In einem Laboralterungsprogramm wurden zahlreiche Probenkollektive mit Kombinationen der Betriebsparameter elektrische Feldstärke, Temperatur und Zeit in den Bereichen 0 kV/mm...52 kV/mm, 20 °C...130 °C und 0 h...8760 h beansprucht und durch elektrische Festigkeitsprüfungen, dielektrische Spektroskopien im Zeit- und Frequenzbereich sowie physikalische Analysen charakterisiert.

Anhand der durchgeführten Untersuchungen wird gezeigt, dass die Kenngrößen elektrische Restfestigkeit E_{RF} , Relaxationszeitkonstante τ_1 und τ_3 , dielektrischer Verlustfaktor $\tan \delta_{0,1 \text{ Hz}}$ und effektive transversale Relaxationszeit $T_{2, \text{eff}}$ als aussagefähige Kennwerte zur Bewertung des Isolationszustandes in der Art eingesetzt werden können, dass sie sensitiv auf Veränderungen der Alterungsgrößen reagieren und Trendverläufe aufweisen. Dabei wirken sich ansteigende Beanspruchungen für E_{RF} in einer abfallenden Tendenz und für die anderen Kennwerte in einem ansteigenden Trend aus. Gemein ist bei den festgestellten Entwicklungen, dass deren Veränderungen aufgrund der teilkristallinen Materialstruktur, des „low-loss“-Verhaltens sowie der hohen Temperaturstabilität durch die herstellungsbedingte Beigabe von Antioxidantien auf schwellwertbasierte Phänomene zurückzuführen sind. Dazu konnte ein Zusammenhang mit Modifikationen der Materialmorphologie hergestellt werden, wozu jedoch thermische Beanspruchungen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur notwendig waren, die auch in geringem Umfang durch elektrische Wechselfelder initiierte langsame Relaxationsvorgänge verursachten.

Die ermittelten diagnostischen Kenngrößen können als Eingangsdaten in einem neuartigen Modellierungsverfahren zur Beschreibung von Lebensdauervolumina eingesetzt werden, dessen Raumachsen von den drei Beanspruchungsgrößen elektrische Feldstärke, Temperatur und Beanspruchungszeit gebildet werden. Der Ansatz basiert auf Methoden der wissenschaftlichen Visualisierung und benötigt keine Kenntnisse hinsichtlich der Verbindung der einzelnen Datenpunkte untereinander im dreidimensionalen Raum. Die Volumenvisualisierung wird auf der Basis einer Flächenformulierung mit Hilfe radialer Basisfunktionen durchgeführt, wodurch mit multivariaten Approximationen eine Volumen begrenzende Randfläche hoher Genauigkeit ermittelt werden kann. Eine regelmäßige Erweiterung der Eingangsdatenbasis wird dabei empfohlen.

Abstract

Investigations on the condition assessment of cross-linked polyethylene used as insulating material in high-voltage cables

Key words: condition assessment – multistress aging – high-voltage power cable – XLPE – dielectric spectroscopy – nuclear magnetic resonance (NMR) – interaction – scientific visualization – radial basis functions

The present thesis reports on experimental investigations concerning the condition assessment of XLPE for applications in high-voltage power cables, and introduces a new approach for life volume modelling based on diagnostic key quantities. The results contribute to the understanding of interaction due to simultaneously applied electrical and thermal stress, and expound utilizable values for condition assessment of XLPE-insulated high-voltage cables. By means of the introduced modelling procedure the gained values can be extrapolated to expected ones with permanent verification.

The tests were performed using a XLPE-insulated model cable which represents a high-voltage cable of current technology regarding the manufacturing process and the material properties. In a laboratory aging course several collectives of specimens were stressed with different combinations of the aging parameters electrical field strength, temperature, and duration within the range of 0 kV/mm...52 kV/mm, 20 °C...130 °C and 0 h...8760 h. The following characterization of the samples was carried out by determination of the electrical strength, dielectric spectroscopies in the time and frequency domain, and physical analysis of material parameters.

The investigations show that the residual electrical field strength E_{RF} , the relaxation time constant τ_1 and τ_3 , the dissipation factor $\tan \delta_{0.1 \text{ Hz}}$, and the effective transverse relaxation time $T_{2, \text{eff}}$ represent meaningful quantities for the condition assessment of XLPE since they are sensitive to changes of the applied stress parameters and exhibit a trending behaviour. For E_{RF} increasing stress results in a decreasing trend, and for the other quantities in a rising tendency. The observed developments have in common that the changes are mainly based on threshold phenomena due to the semi-crystalline structure, the low-loss behaviour, and the stability concerning temperature effects entailed by the addition of oxidation inhibitors during the manufacturing process. In this context a relationship can be established towards modifications of the material morphology, but therefore temperatures in the range of the crystalline melting point are necessary which also cause slight changes in slow relaxation processes initiated by electrical alternating fields.

For life modelling of XLPE the gained aging markers from the diagnostic investigations are used as input values based on a multidimensional array concept. The spatial axes of the volume are given by the stress parameters electrical field strength, temperature, and duration. Utilizing methods from scientific visualization the approach does not need any information concerning the kind of spatial connection between the single data values. The volume visualization is carried out by surface extraction using radial basis functions which create a highly accurate boundary of the volume by application of multivariate approximations. A continuous expansion of the generally sparse data basis of input values is recommended. This enables a reliable verification of the extrapolated values. The procedure for life volume modelling is done exemplarily with residual electrical field strengths as input values.

Übersicht

Die vorliegende Arbeit berichtet über experimentelle Untersuchungen mit diagnostischen Verfahren zur Zustandsbewertung von Energiekabeln mit einer Isolierung aus vernetztem Polyethylen (VPE), wie sie für Kabelkonstruktionen im Hoch- und Höchstspannungsbereich verwendet wird. Dazu wurden zunächst verschiedene Musterkollektive eines Modellkabels im Rahmen eines Laboralterungsprogramms elektrisch, thermisch sowie elektrisch und thermisch vorbeansprucht. Dabei orientierten sich die eingestellten Parameterkombinationen an den für Alterungsuntersuchungen gängigen Verhältnissen, die zur Abbildung möglichst realer Betriebsbedingungen verwendet werden. Besonderes Augenmerk wurde auf die nur schwer zu erfassenden Wechselwirkungen bei kombiniert vorliegen Beanspruchungen gelegt. Neben den praktischen Versuchen sowie der Implementierung stabiler Auswerteverfahren zur Bildung aussagefähiger Kennwerte wird ein Ansatz vorgestellt, der die ermittelten Indikatoren verwendet und zur Modellierung eines so genannten Lebensdauervolumen nutzt, das von den Beanspruchungsparametern elektrische Feldstärke, Temperatur und Zeit aufgespannt wird. Die dabei eingesetzten Techniken sind dem Bereich der wissenschaftlichen Visualisierung aus der Computergraphik entnommen und an die vorliegenden Gegebenheiten angepasst.

Im Rahmen einer einleitenden Betrachtung der gegenwärtigen Situation hinsichtlich der Anwendung von VPE-isolierten Kabelstrecken zur Energieübertragung mit Hoch- und Höchstspannungen wird die Bedeutung von zustandsbewertender Diagnostik an Betriebsmitteln hoher Investitionsgüte geschildert und daraus die Motivation für die durchgeführten Untersuchungen abgeleitet. Daran schließt sich eine Vorstellung der in der Literatur diskutierten Alterungsmechanismen von Polymerisierungen für Hochspannungskabel unter Aufzeigung alterungsrelevanter Faktoren und deren Wirkung auf den Isolationszustand an, wobei eine grundsätzliche Materialbeschreibung sowie der aktuelle Stand der Fertigungstechnologie eingeschlossen sind. Davon ausgehend werden im zweiten Kapitel ausgewählte Verfahren zur Charakterisierung und Zustandsbewertung von VPE-isolierten Kabeln vorgestellt.

Das dritte Kapitel gibt einen Überblick über die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten experimentellen Untersuchungen. Neben den technischen Verfahrensbeschreibungen wird besonders auf deren theoretische Hintergründe mit Blick auf die Erfassung physikalischer Vorgänge von detektierbaren Zustandsveränderungen in Abhängigkeit der eingestellten Stressgrößen eingegangen. Der Schwerpunkt liegt dabei auf dem Ladungsträgerverhalten im Isolierstoffvolumen sowie auf den von Beanspruchungswerten abhängigen Modifikationen der Materialmorphologie.

Im vierten Kapitel erfolgt eine Darstellung der ermittelten Versuchsergebnisse, die anhand der in der Literatur verfügbaren Erkenntnisse diskutiert werden. Dabei werden die Einflüsse der einzelnen Beanspruchungsgrößen auf Veränderungen von zustandsbeschreibenden Kennwerten herausgearbeitet.

Danach wird über die wissenschaftliche Visualisierung spärlich verteilter dreidimensionaler Daten berichtet, wie sie für mit Hilfe von diagnostischen Verfahren ermittelte Kennwerte in einem die Lebensdauer beschreibenden Volumen vorliegen können. Dabei wird die Technik vorgestellt und ein Ausblick auf eine mögliche praktische Anwendbarkeit gegeben. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung der wesentlichen Erkenntnisse sowie einem Verzeichnis des verwendeten Schrifttums und der zitierten Normen.

Einleitung

Kabelanlagen mit Isolierungen aus vernetztem Polyethylen (VPE) zur Energieübertragung mit Hoch- und Höchstspannungen stellen heutzutage in städtischen Bereichen und ländlichen Zonen mit besonderen ökologischen Randbedingungen ein wichtiges Betriebsmittel der elektrischen Energieversorgungsnetze dar. Darüber hinaus wurden vor dem Hintergrund großflächiger Versorgungsausfälle durch extreme Umweltereignisse, wie sie sich in den Jahren 1999 bis 2005 in französischen, italienischen und deutschen Freileitungsnetzen ereignet haben, sowie im Zusammenhang mit Netzverstärkungsaktivitäten zur Aufnahme von hohen Energiemengen aus Windkraftanlagen zusätzliche Anwendungsbereiche für den Einsatz von Kabelanlagen aufgezeigt [EU2003, Brakelmann2004]. Die Gründe dafür fallen in den politischen Bereich, wo durch die Europäische Kommission ein koordiniertes Vorgehen der europäischen Länder bei der Verkabelung von umweltbedingt exponierten Freileitungen zur Erhöhung der Versorgungssicherheit verstärkt gefordert wird, und in den technischen Bereich, wo durch Entwicklungen im Bereich der Kabelkonstruktion und der Legetechnik unter bestimmten Randbedingungen VPE-isolierte 110-kV-Hochspannungskabel bei Berücksichtigung von Verlust- und Wartungskosten gegenüber Freileitungen wirtschaftlicher installiert werden können [Brakelmann2004, Kaumanns2006]. Insbesondere durch die technische Beherrschung großer Leiterquerschnitte bis zu 2500 mm² können induktiv kompensierte Hochspannungskabel für Entfernungen bis etwa 200 km verwendet werden und dabei je nach Verlegeart und thermischer Stabilisierung elektrische Leistungen von bis zu ca. 460 MVA übertragen [Brakelmann2004].

Ferner ist auch eine Zunahme der Bedeutung von Kabelanlagen als Bestandteil des europäischen Energieübertragungsnetzes zu erwarten, da infolge der in der Vergangenheit durchgeführten Strommarkt-Liberalisierung erhebliche Veränderungen im Lastflussverhalten herbeigeführt wurden und inzwischen regelmäßig weiträumige Transporte großer Leistungen auftreten. Dadurch werden die betrieblichen Netzreserven stark beansprucht, so dass die Versorgungssicherheit des Verbundsystems reduziert wird. Als Folge dieser Veränderungen wird eine Zunahme kritischer Betriebssituationen mit der Gefahr großräumiger Versorgungsunterbrechungen registriert [ETG2005]. So erlangen Überlastreserven von Übertragungssystemen einen höheren Stellenwert, und ein Windenergie-Erzeugungsmanagement, das in Starkwindzeiten Windenergieanlagen zur Erhaltung der Netzstabilität vom Netz trennt, ist in Form von kostenintensiven Ausfällen zunehmend unwirtschaftlich.

Weiterhin stehen ebenfalls die politischen Rahmenbedingungen für Leitungsbauprojekte der elektrischen Energieversorgung im Hoch- und Höchstspannungsbereich unter aktueller Überprüfung, wie die Diskussion eines Gesetzentwurfes zur Beschleunigung von Planungsverfahren für Infrastrukturvorhaben zeigt [Bundestag2006]. Darin wird verdeutlicht, dass insbesondere auf langwidrige Raumordnungsverfahren verzichtet werden kann, wenn Leitungsprojekte bereits in regionalen Entwicklungsplänen unter Berücksichtigung aller Beteiligten behandelt werden. In der Vergangenheit wurde im Jahr 2001 durch eine Novellierung des Energiewirtschaftsgesetzes bereits ein erheblicher Beschleunigungseffekt erzielt, indem die Planfeststellung und die Plangenehmigung für Freileitungsprojekte konzentriert wurden. Allerdings erfordert die gegenwärtige Situation in der Bundesrepublik Deutschland zur Aufnahme großer Energiemengen aus Windkraftanlagen und zur Sicherstellung der Versorgungssicherheit einen besonders raschen Netzausbau, der durch die im Vergleich zu Kabeln deutlich längeren Genehmigungsphasen für Freileitungen erschwert wird. Es ist somit sicherzustellen, dass zukünftig kurze und somit praxisnahe

Bewilligungszeiträume für Kabelprojekte zur Energieübertragung realisierbar sind, um nicht zusätzlich den Ausbau weiterer Anlagen zur Erzeugung regenerativer Energien zu beeinträchtigen.

Die Bedeutsamkeit von Kabelanlagen als Bestandteil der Energieübertragungsnetze wird somit zukünftig weiter ansteigen, wobei jedoch unterschiedliche Entwicklungspotenziale in der Hoch- und in der Höchstspannungsebene vorhanden sind. So sind im Höchstspannungsbereich VPE-isolierte Kabelsysteme mit einer Länge von bis zu etwa 20 km sowie einem Leiterquerschnitt von 2500 mm² in der 400-kV-Ebene bereits in Betrieb [Sadler2004] und für 500-kV-Anwendungen beauftragt [Nexans2007]. In der Hochspannungsebene erschließen sich weltweit aufgrund von technologischen Fortschritten bisher schwer zugängliche Märkte [Brugg2007]. Wirtschaftliche 110-kV-Kabelsysteme mit VPE-Isolierung eröffnen auch ein Anwendungsfeld in der Netzankopplung von Windparks großer Leistung [Kaumanns2006].

VPE ist heutzutage das bedeutendste Isoliermaterial für Kabelsysteme zur elektrischen Energieübertragung. Als Grundlage dafür dienen technologische Weiterentwicklungen vorwiegend im Bereich der Materialreinheit der verwendeten Isolierstoffkomponenten und der Fertigungstechnik. Mit Hilfe von standardisierten Qualitätssicherungen wird im Rahmen von Typ- und Stückprüfungen und „prequalification tests“ zur Demonstration der Langzeiteignung vollständiger Systeme eine hohe technische Zuverlässigkeit von Kabelanlagen sichergestellt [Peschke1998, Schroth2007]. Einen besonderen Stellenwert nimmt in diesem Zusammenhang die Vor-Ort-Spannungsprüfung verlegter Kabelsysteme ein. Derartige Prüfungen gewährleisten eine ordnungsgemäße und betriebsrelevante Installation der gesamten Kabelstrecke und bestätigen zudem nach Reparaturarbeiten deren korrekte Durchführung. Die in [CIGRÉ1997] zusammengefassten Empfehlungen hinsichtlich der Spannungspegel und -art sowie der Prüfdauer für die Vor-Ort-Prüfung von verlegten Kabelstrecken wurden durch eine Auswertung der damit gemachten Erfahrungen in 15 Ländern weltweit überprüft [CIGRÉ2002]. Dabei ergab sich eine Bestätigung der Prüfeempfehlungen in [CIGRÉ1997]. Somit liegen verlässliche Prüfbedingungen vor, die einen hohen Qualitätsstandard von verlegten Kabelsystemen sicherstellen. Gegenwärtig verfügbare mobile Resonanzanlagen in Modultechnik ermöglichen auch die Prüfung großer Kabelkapazitäten mit Wechselspannung.

Die hohe Produktgüte aktuell gefertigter VPE-isolierter Hoch- und Höchstspannungskabel bildet die Grundlage für Projektierungen von Kabelsystemen mit Betriebszeiten von 40 Jahren und mehr [Patsch2002, Schroth2007]. Die dafür zu Grunde liegenden Eigenschaften neuer Kabel werden jedoch durch Alterungsprozesse während des Betriebes verändert, so dass sich ein Bedarf nach möglichst genauer Kenntnis des Isolationszustandes der Betriebsmittel ergibt, um eine Bewertung der Anlagenverfügbarkeit und deren Zuverlässigkeit unter Beachtung der Relevanz im Energieversorgungsnetz vornehmen zu können. Die Schwierigkeit einer Zustandbewertung liegt indes darin, dass im Betrieb von überlagerten Beanspruchungen unterschiedlicher Art und Intensität ausgegangen werden muss. Dadurch liegen komplexe Wechselwirkungsphänomene im Bereich der Materialdegradation vor, die nur sehr schwierig zu erfassen sind. So können Schädigungseffekte, die sich bei festen Isolierstoffen in einem molekularen Abbau äußern, eine kombinierte Temperatur-Zeit-Abhängigkeit aufweisen, da relevante chemische Reaktion entsprechend ihrer thermischen Aktivierungsenergie bei verschiedenen Temperaturen unterschiedlich schnell ablaufen. Bei hohen thermischen Beanspruchungen können aufgrund von Modifikationen im Leitfähigkeitsverhalten Veränderungen der lokalen Feldverteilung initiiert werden, die wiederum

zu Abwandlungen von Alterungsphänomenen führen [Patsch2002]. Die präzise Vorhersage der Restlebensdauer einer in Betrieb befindlichen Kabelanlage ist daher nach heutigem Kenntnisstand nicht möglich. Allerdings ist vielfach eine Zustandsbewertung im Rahmen kontinuierlicher oder nach zeitlich festgelegten Intervallen vorgenommenen Überprüfungen von zuvor definierten Kennwerten in der praktischen Anwendung. Als problematisch erweist sich in diesem Zusammenhang, dass zunächst geeignete Diagnosegrößen zuverlässig bestimmt werden müssen und danach eine Interpretation der erzielten Resultate hinsichtlich deren Betriebsgefährdung durchzuführen ist [Rüter2006]. Die Ergebnisbewertung erfordert neben einer im Hinblick auf Alterungseffekte sensitiven Messmethodik auch ein materialspezifisches Verständnis, dass allerdings bei synergetisch vorliegenden Betriebsbeanspruchungen sehr komplex sein kann [Patsch2002].

Auf die Notwendigkeit der Erprobung geeigneter Diagnoseverfahren zur Beurteilung des Zustandes von Betriebsmitteln im Hochspannungsbereich wird bereits seit einigen Jahren hingewiesen [Kärner1995]. Insbesondere durch die Liberalisierung der Energiemärkte werden die Betreiber von Betriebsmitteln der Energieversorgungsnetze verstärkt dazu gezwungen, effektive Strategien zur Handhabung gestiegener Kosten und zur Aufrechterhaltung hoher Versorgungsqualitäten anzuwenden oder zu entwickeln. Als wesentliche Ziele werden dazu neben der Lastoptimierung der Anlagen vor allem die Verlängerung der Restnutzungsdauer der Komponenten angestrebt, um Neuinvestitionen zu minimieren [Claudi2002]. Die Entwicklung effektiver Diagnoseverfahren einschließlich analytischer Methoden zur Quantifizierung der ermittelten Messergebnisse hat daher in den letzten Jahren eine zunehmende Bedeutung erlangt. Dabei wird speziell der Diagnostik dielektrischer Kennwerte und der permanenten Registrierung von Teilentladungsaktivitäten ein hoher Stellenwert zugeordnet. Kenntnisse über den Einfluss kombinierter Beanspruchungen auf dielektrische Diagnosegrößen sind erforderlich, um eine Zustandsbewertung zur Abschätzung der Betriebsfähigkeit der untersuchten Betriebsmittel vornehmen zu können. Es können jedoch auch nicht elektrische Diagnosetechniken zur Verifizierung der Resultate aus dielektrischen Untersuchungen herangezogen werden. Im Hinblick auf eine Frühindikation durch rechtzeitige Registrierung von Veränderungen diagnostizierter Größen sowie deren Interpretation ist es daher wünschenswert, wenn grundlegende Erkenntnisse über eigenschaftsmindernde Degradationsprozesse in Abhängigkeit der Beanspruchungszeit vorliegen [Kärner1995, Patsch2002].

Im dem skizzierten Problemfeld liegen Untersuchungsergebnisse hinsichtlich der Erprobung von Diagnoseverfahren zur Zustandsbewertung von VPE-isolierten Kabeln vor. Sie umfassen sowohl Mess- und Prüfverfahren als auch analytische Ansätze zur Analyse der ermittelten Messresultate und reichen von kontinuierlicher Überwachung von Teilentladungsaktivitäten [Steennis2006] an in Betrieb befindlichen Kabelstrecken bis zu vergleichsweise neuen Möglichkeiten zur „off line“- und „on site“-Bewertung des Isolationszustandes mit Hilfe von dielektrischen Spektroskopien im Zeit- und Frequenzbereich [Zaengl2003b]. Diese zerstörungsfreien Techniken sind aus messtechnischer Sicht schon weit entwickelt. Weiteres Entwicklungspotenzial ist daher im Wesentlichen in der Korrelation von überlagerten Betriebsbeanspruchungen mit zeitlichen Veränderungen der diagnostizierbaren Kennwerte zu finden. Es erscheint jedoch eine auf den Resultaten der Messergebnisinterpretation basierende Maßnahmenentscheidung nicht ohne weiteres möglich zu sein, da zunehmend auch äußere Einflüsse, wie die Bedeutung der Komponente im Netzverbund, zukünftige Lastszenarien oder geplante Wartungs- und Instandhaltungsarbeiten, an Einfluss gewinnen.

Neben den integral arbeitenden Verfahren der dielektrischen Spektroskopie und der Indikatoren für eine lokale Materialdegradation anzeigenden Teilentladungsmessung werden in der letzten Zeit auch Raumladungsmessungen an großvolumigen Polymergeometrien als viel versprechende Methode zur Detektion lokaler Defektverteilungen angesehen, die vielfältige Abbauphänomene maßgebend beeinflussen. Im Wesentlichen ist eine verbesserte Aussagekraft von Messungen der Ladungsverteilung auf weiterentwickelte Messtechniken unter Einsatz innovativer Elektronik zurückzuführen. So lassen sich beispielsweise vergleichsweise dickwandige Kabelkonstruktionen mit Hilfe der „thermal step method (TSM)“ oder des modifizierten „pulsed electro-acoustic (PEA)“-Verfahrens untersuchen. Allerdings erlaubt das gegenwärtig noch beschränkte räumliche Auslösungsvermögen der Techniken keine fehlerfreie Bestimmung der in dem Polymeren gespeicherten Gesamtenergie oder von durch Anregung aus Gitterstrukturen freigesetzten Energien, so dass eine Anwendung hinsichtlich einer Isolationscharakterisierung derzeit noch nicht möglich ist [Tourelle1998, Platbrood2002].

Für eine Zustandsbewertung von VPE-Isolierungen für Energiekabelanwendungen ist es wichtig, diagnostische Verfahren an vollständigen Isoliersystemen anzuwenden, da Alterungserscheinungen durch viele Kabelparameter, wie Konstruktion, Ausführung der inneren und äußeren Leitschicht, Reinheitsgrad des Isolierstoffes und Vernetzungsart sowie durch die Betriebsparameter Temperatur, elektrische Feldstärke, Dauer und mechanische Beanspruchung, beeinflusst werden. Die Komplexität von Alterungsprozessen wird wesentlich durch die Überlagerung der Einflüsse verschiedener Beanspruchungen auf die Betriebsfähigkeit der Anlagen hervorgerufen. Aus der Superposition unterschiedlicher Einflussgrößen gehen differenzierte Wechselwirkungen untereinander hervor, so dass die Erfassung derartiger Wechselwirkungen ein wesentliches Ziel von Arbeiten auf dem Gebiet der Alterungsmodellierung ist [Agarwal1995].

Bei der Betrachtung so genannter „multifactor aging“-Phänomene sind folgende Faktoren zu berücksichtigen [Agarwal1995, Mazzanti1997]:

- Materialart und Kenntnisse über die Probenherstellung,
- Dauer und Frequenz der Beanspruchungsgrößen,
- Art und Höhe des resultierenden elektrischen Feldes,
- Synergie der Einflussparameter,
- Beeinflussung physikalischer und chemischer Prozesse durch Stressgrößen,
- Grenzflächen- bzw. Volumeneffekte.

Aufgrund der jahrelangen guten Erfahrung mit VPE-isolierten Kabeln und den seit langem durchgeführten fertigungsbegleitenden Prüfungen spielen die meisten Kabeleigenschaften bei der Beurteilung der Alterung keine Rolle mehr. VPE-isolierte Hochspannungskabel weisen in der Regel einen Schutz gegen das Eindringen von Feuchtigkeit auf, so dass hier die Beeinflussung von Alterungsmechanismen durch so genannte „water-trees“ ebenfalls von untergeordneter Bedeutung ist. Zudem können durch Kabelmantelprüfungen oder Sensoren Mantelfehler, die zum Eindringen von Wasser führen, leicht detektiert und behoben werden. Für die Alterung insbesondere von VPE-isolierten Hochspannungskabeln sind daher die Betriebsparameter Temperatur und elektrische Feldstärke von besonderer Bedeutung. In der Literatur sind zahlreiche Modelle zur Bewertung der Alterung und zur Abschätzung der Restlebensdauer in Abhängigkeit der Temperatur und der elektrischen Feldstärke beschrieben [Gjaerde1997, Mazzanti1997]. Die dort diskutierten Schwierigkeiten sind im Bereich der Auswahl geeigneter Beanspruchungswerte

für beschleunigte Alterungsversuche zu finden, da eine möglichst betriebsähnliche Alterung in hinreichender Zeit angestrebt wird. Darüber hinaus werden geeignete Indikatoren für die Erfassung von gegenseitigen Beeinflussungen verschiedener, gleichzeitig beaufschlagter Alterungsparameter gegenwärtig noch erforscht. Aussagen zum elektrischen Langzeitverhalten hochwertiger VPE-isolierter Hochspannungskabel aktueller Fertigungstechnologie werden vorwiegend mit Hilfe von Modellprüfungen gewonnen. Diese werden in Form von Lebensdauerversuchen an Kabelmustern mit identischer Isolierstoffmischung sowie einer gegenüber realen Kabelgeometrien deutlich reduzierten Wandstärke durchgeführt [Peschke1998]. Die in der Literatur zu diesem Themenkomplex dargestellten Ergebnisse und die daraus abgeleiteten Modellbeschreibungen basieren jedoch auf Untersuchungen an Modellkabeln, die in der Regel vor vielen Jahren durchgeführt wurden und bei denen die Kabelparameter, insbesondere die Anforderungen an die Leitschicht und das Isoliermaterial, nicht mehr mit dem aktuellen Qualitätsstandard übereinstimmen. Die vorliegenden Erfahrungswerte mit maximalen elektrischen Feldstärkebeanspruchungen bis etwa 7 kV/mm spiegeln die aktuelle Situation mit elektrischen Beanspruchungen bis zu 16 kV/mm und hochreinen, vernetzungsoptimierten Isoliercompounds nur noch sehr eingeschränkt wieder [Laurent2003].

Den Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit bilden daher experimentelle Untersuchungen an einem VPE-isolierten Modellkabel, dass bezüglich des Herstellungsprozesses und den Materialeigenschaften mit einem Hochspannungskabel aktueller Technologie identisch ist. Es wurden zahlreiche Kabelkollektive in einem umfangreichen Laboralterungsprogramm verschiedenen elektrischen, thermischen und gleichzeitig elektrischen und thermischen Beanspruchungen über unterschiedliche Zeiträume bis zu maximal einem Jahr ausgesetzt. Anhand von begleitenden elektrischen, dielektrischen und nicht elektrischen Diagnoseverfahren wurden mögliche Korrelationen geeigneter Kennwerte, die aus den Diagnosemessungen gewonnen wurden, mit den Beanspruchungsparametern untersucht. Dabei wurden Lösungen auf dem Gebiet der Messtechnik von empfindlichen isothermen und thermisch stimulierten Depolarisationsströmen erarbeitet sowie robuste Auswertungsmethoden zur Bestimmung aussagefähiger Indikatoren implementiert. Ferner wurden mit Hilfe nicht elektrischer Messverfahren wie der mobilen unilateralen magnetischen Kernresonanz ermittelte materialmorphologische Kennwerte zugänglich gemacht, die eine Bewertung des Zusammenhanges zwischen äußeren Beanspruchungsgrößen und inneren Werkstoffmodifikationen ermöglichen.

Die aus den experimentellen Versuchen abgeleiteten zustandsbeschreibenden Kenngrößen, wie elektrische Restfestigkeit E_{RF} , Relaxationszeitkonstante einzelner Exponentialglieder τ_i , Aktivierungsenergie W_A und effektive transversale Relaxationszeit $T_{2, \text{eff}}$ finden als skalare Eingangswerte in einem Berechnungsverfahren zur Modellierung eines Lebensdauervolumens Verwendung, das von den drei Beanspruchungsgrößen elektrische Feldstärke, Temperatur und Zeit aufgespannt wird. Dazu wurden Techniken der wissenschaftlichen Visualisierung aus dem Bereich der Computergraphik eingesetzt, die spezielle Möglichkeiten zur Modellierung spärlich im Raum verteilter Datenpunkte eröffnen. Zur Verbesserung der Berechnungsgenauigkeit wurden verschiedene Interpolationsverfahren zur Generierung weiterer Datenpunkte miteinander verglichen. Am Beispiel des Kennwertes E_{RF} wurden anschließend mit Hilfe des Modells bestimmte elektrische Restfestigkeiten an vorgegebenen Raumpunkten mit experimentell ermittelten Werten verglichen, wobei die Versuchsdaten nicht in die Modellierung eingingen.

1 Alterungsmechanismen von Polymerisierungen für Hochspannungskabel

Die Untersuchungen zur Charakterisierung des Alterungsverhaltens von polymerisierten Energiekabeln aus vernetztem Polyethylen (VPE) wurden an einem Modellkabel vorgenommen, das bezüglich der Konstruktion, den verwendeten Leitschichten und dem Herstellungsprozess einem realen Hochspannungskabel nach aktuellem Fertigungsstandard sehr ähnlich ist. Der Aufbau des Kabels mit dem Typkurzzeichen N2XS(Y) 95 RM/16 6/10 kV ist den Anforderungen nach VDE 0276/620 angelehnt und weist gegenüber der Norm eine reduzierte Wandstärke auf. Daher sollen zunächst in dem folgenden Kapitel grundlegende Informationen über den eingesetzten Isolierstoff vorgestellt und alterungsrelevante Einflussfaktoren auf den Isolationszustand beschrieben werden. Dabei wird zuerst auf die Herstellung sowie den Einsatz von VPE in Kabelanlagen eingegangen. Daran schließt sich eine Betrachtung der wesentlichen elektrischen und physikalischen Eigenschaften des Isoliermaterials an. Abschließend erfolgt eine Übersicht ausgewählter Alterungsfaktoren sowie eine Beschreibung ihres Einflusses hinsichtlich von Veränderungen des Isolationszustandes.

1.1 Grundlegender Aufbau von vernetztem Polyethylen (VPE)

VPE dient seit einigen Jahren weltweit als bedeutendes Isoliermaterial für Energiekabel im Mittel-, Hoch- und Höchstspannungsbereich. Dabei liegen die wesentlichen Vorteile von VPE gegenüber herkömmlichen mit Isolieröl getränkten oder mit Massen imprägnierten Papierisierungen im ökonomischen sowie im ökologischen Bereich. VPE-isolierte Kabel erfordern einen geringeren Montageaufwand und sind im Betrieb praktisch wartungsfrei. Darüber hinaus ist aufgrund des trockenen Dielektrikums die Gefahr von Leckagen mit Öl- oder Masseaustritt nicht gegeben. Weiterhin erlauben die guten elektrischen und dielektrischen Eigenschaften von VPE sowie hohe Materialreinheiten und weit entwickelte Fertigungstechnologien, wie z. B. Dreifachextrusion, Aderherstellung unter Reinraumbedingungen und Trockenvernetzung, einen Einsatz als Isoliermaterial für Energiekabel im gesamten Spannungsbereich bis 500 kV. Im Vergleich dazu ist z. B. die Verwendung von „ethylene propylene rubber (EPR)“ als weiterer, verbreiteter eingesetzter Isolierstoff aufgrund seiner vergleichsweise hohen dielektrischen Verluste auf eine Applikation bis zu einer Spannungsebene von etwa 150 kV begrenzt [Peschke1998, Weißenberg1999].

1.1.1 Herstellung, Formulierung und Einsatz von VPE in Kabelanlagen

Als Ausgangsmaterial von in Kabelanlagen eingesetztem VPE dient in der Regel thermoplastisches „low-density polyethylene (LDPE)“. Das Basiscompound entsteht dabei aus dem im Hochdruckverfahren radikalisch polymerisierten Polyethylen (PE). Dabei werden keine Spaltprodukte, wie z. B. Wasser oder niedermolekulare Kohlenwasserstoffe, freigesetzt, wodurch eine wesentliche Voraussetzung für die guten dielektrischen Eigenschaften von PE geschaffen wird [Peschke1998]. Der Verlauf der Polymerisation von monomerem Ethylen kann in unterschiedliche Vorgänge unterteilt werden. Nach dem Start der Reaktion laufen zunächst Kettenwachstum, -abbruch und -übertragung ab, wobei durch Kettenabbrüche endständige Doppelbindungen gebildet werden können. Darüber hinaus kann das Wachstum einer Polymerkette auch durch Übertragungsreaktionen beendet werden. Dieser häufig auftretende Fall führt in einer intermolekularen Reaktion zu Langkettenverzweigungen. Kurzkettenverzweigungen können demgegenüber durch intramolekulare Übertragungen an dem wachsenden Makromolekül entstehen. Durch ab-

schließende Depolymerisation, die in einer Abbaureaktion vornehmlich Radikalstellen an einem Makromolekül erzeugt, werden verschiedene verzweigte Doppelbindungstypen gebildet. In der Regel laufen diese Reaktionen nebeneinander ab und tragen aufgrund von unterschiedlichen Randbedingungen, wie z. B. Druck oder Temperatur, zu verschiedenen Anteilen zur gesamten Polymerisationsreaktion bei [Vieweg1969]. Neben den erwähnten Parametern können auch die Art und Konzentration von Initiatoren, wie z. B. Sauerstoff beim Hochdruckverfahren, und die Reaktionszeit den Reaktionsablauf beeinflussen und wichtige Eigenschaften, wie das Molekulargewicht und die Dichte des Polymeren, mitbestimmen [Schaumburg1997]. In der Produktabscheidung wird nach der Polymerisationsreaktion das erzeugte Polymer stufenweise bei verschiedenen Drücken entspannt und gelangt anschließend als zähflüssige Schmelze bei erhöhter Temperatur in einen Extruder. Hier kann die Beigabe von Stabilisatoren oder anderen Zusatzstoffen erfolgen. Das Polymerisat wird dann in dünne zylinderförmige Stränge gepresst, in einem Wasserbad abgekühlt und meist in kleine Granulate weiter zerkleinert [Vieweg1969].

Makromoleküle bzw. Polymere weisen entweder eine lineare Kettenstruktur auf oder sind aus verschiedenen Verzweigungsformen aufgebaut. Dabei kann die Anordnung von Polymermolekülen vom ungeordneten bzw. amorph über einen teilweise geordneten bzw. teilkristallinen bis hin zu einem vollständig geordneten bzw. kristallinen Aufbau reichen. Wesentlich für die Polymerstruktur ist deren Zusammensetzung sowie die Art der Herstellung. Dabei kommt insbesondere der Abkühlgeschwindigkeit der Polymerschmelze eine erhöhte Bedeutung zu. Hohe Temperaturen ermöglichen den einzelnen Ketten in der Schmelze eine Beweglichkeit, die über Segmentsprünge und Reptation translatorisch und rotatorisch ausgebildet ist. Infolgedessen können sich z. B. Seitengruppen durchdringen. Diese Bewegung nimmt beim Abkühlvorgang in der Schmelze ab. Polymere mit aperiodischem Kettenaufbau können verbreitet nicht kristallisieren und behalten bei einer Abkühlung auf Temperaturen unterhalb der Glasübergangstemperatur T_g einen weitestgehend amorphen Zustand. Eine periodisch aufgebaute Kettenstruktur von Makromolekülen ermöglicht hingegen einen Übergang der Schmelze hin zu einem kristallinen oder teilkristallinen Aufbau [Schaumburg1997]. PE weist im Idealfall eine regelmäßige molekulare Struktur auf und wird daher auch als lineares PE bezeichnet. Infolge der radikalisch eingeleiteten Polymersynthese werden jedoch unterschiedlich lange Seitenketten insbesondere in Form von Kurzkettenverzweigungen gebildet, die als Defektstellen nachfolgend die vollständige Kristallisation des Materials behindern. Aus kinetischen Gründen erfolgt die Kristallisation aus der Schmelze unter Faltenbildung der einzelnen Ketten. Die somit gebildeten kristallinen Domänen innerhalb der teilkristallinen Polymerstruktur weisen einen lamellenförmigen Aufbau auf. Zwischen den einzelnen Lamellen trennen im amorphen Zustand verbliebene Schichten die Kristalli-

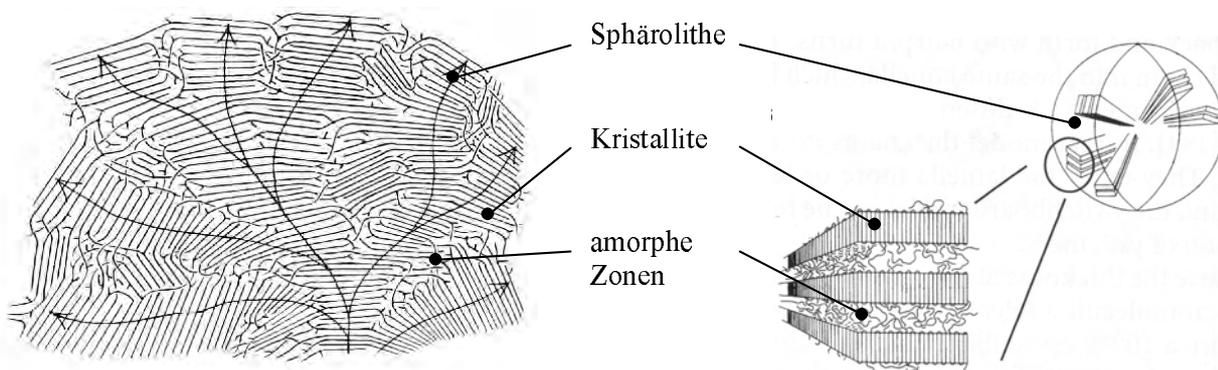


Bild 1.1: Morphologische Struktur von teilkristallinen Polymeren [Renfrew1960, Kremer2003]

te voneinander. Durch eine von einem Primärkern aus fortgesetzte radiale Verzweigung von Lamellen zu Lamellenbüscheln entstehen übermolekulare Strukturen, die als Sphärolithe bezeichnet werden und in Bild 1.1 schematisch dargestellt sind [Batzer1985, Das-Gupta1994]. Teilkristalline Polymere befinden sich üblicherweise nicht im thermodynamischen Gleichgewicht. Aus der Sicht einzelner Phasen resultiert daraus eine Verbindung von amorphen und kristallinen Domänen [Elias2001]. Ein einzelnes Kettenmolekül verläuft oftmals segmentweise durch die Lamellen und kann in der amorphen Zwischenschicht in benachbarte Bereiche wechseln oder unter Schlaufenbildung in die gleiche Lamelle zurückkehren. Durch diese Verbundenheit der lamellaren Struktur über zahlreiche Polymerketten wird eine hohe mechanische Festigkeit in sphärolithisch kristallisierten Polymeren erreicht. Die Wachstumszonen einzelner Sphärolithe stoßen innerhalb der Polymerstruktur beim Abkühlvorgang aus der Schmelze zusammen und bilden dabei charakteristisch abgegrenzte Ränder, so dass sich unterschiedlich große amorphe Domänen ausbilden können. In diesen Bereichen findet bei längerer Behandlung der Polymerprobe mit Temperaturen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur T_m eine Nachkristallisation statt, die zu einer Erhöhung des Kristallinitätsgrades führt [Schaumburg1997]. In Bild 1.2 ist allgemein der Verlauf des Kristallinitätsgrades α in Abhängigkeit von der Kristallisationszeit $t_{\text{Krist.}}$ bei einer isothermen Kristallisation von Polymeren veranschaulicht.

In der Phase der Hauptkristallisation erstarrt fast die gesamte Polymerschmelze in kurzer Zeit zu teilkristallinem Material. Dabei liegt eine hohe Abhängigkeit von der Temperatur vor. Nach Ablauf dieses Prozesses vergrößert sich der Ordnungszustand innerhalb der entstandenen morphologischen Struktur nur noch langsam aber kontinuierlich, da mit abnehmender Temperatur die Viskosität der Polymerschmelze ansteigt und somit nur noch ein abgeschwächtes Kristallwachstum vorliegt. Diese Phase wird als Nachkristallisation bezeichnet [Batzer1985]. In der Regel bleibt in einer isothermen Polymerkristallisation selbst bei einer sehr regelmäßigen Kettenstruktur ein gewisser Anteil des Materials amorph, der bei einem lamellarkristallinen Aufbau vorwiegend in Faltungsbögen einzelner Kettenmoleküle oder in den zwischenlamellaren Segmenten existiert. Durch unsymmetrische Kettenstrukturen, die z. B. von Verzweigungen oder Endgruppen verursacht werden, vergrößert sich der amorphe Bereich und damit die Flexibilität des Werkstoffes [Vieweg1969]. Eine molekulare Auflockerung kann auch durch geringere Sphärolithengrößen verursacht werden, die z. B. durch höhere Temperaturänderungsgeschwindigkeiten beim Abkühlvorgang entstehen [Renfrew1960]. Innerhalb einer Kette besitzen Makromoleküle starke Bindungen durch Elektronenbrücken, wohingegen die Bindungen zwischen einzelnen Ketten durch *Van-der-Waals*-Kräfte, Dipolbindungen oder Wasserstoffbrücken nur schwach ausgeprägt sind. Diese Unterschiede werden als Haupt- und Nebervalenzen typisiert [Münch1993].

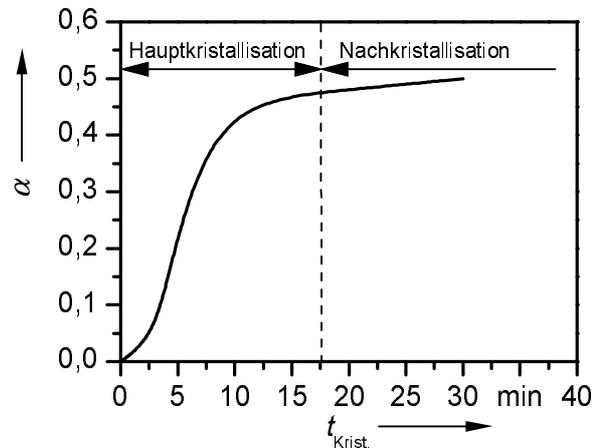


Bild 1.2: Verlauf des Kristallinitätsgrades α in Abhängigkeit von der Kristallisationszeit $t_{\text{Krist.}}$ bei einer isothermen Polymerkristallisation [Batzer1985]

Tabelle 1.1: Übersicht von Strukturparametern der molekularen und übermolekularen Ebene von teilkristallinen Polymeren [Newe1980]

molekulare Ebene			
chemische Struktur		physikalische Struktur	
Aufbau, Art der Monomere (Konstitution)		räumliche Gestalt (Konformation ¹)	
mittlere Molmasse, Molmassenverteilung			
Taktizität (Konfiguration)			
Verzweigungsgrad			
übermolekulare Ebene			
1. übermolekulare Ebene		2. übermolekulare Ebene	
kristalline Phase	amorphe Phase	nicht orientiert	orientiert
Kristallstruktur, Kristallinitätsgrad	Konformation der Verbindungsmoleküle	Typ und Größe der Sphärolithe	Orientierungsgrad
Gitterparameter, Lamellenstruktur	Verschlaufungen (phys. Vernetzung)	Ausbildung der Sphärolithengrenzen	

Die Struktur und der Anteil der kristallinen Domänen sind in einem engen Zusammenhang mit der relativen Molekülmasse sowie der Molekülmassenverteilung des Polymeren zu betrachten. So kann z. B. zunächst der Kristallinitätsgrad und damit entsprechend auch die Dichte des Materials mit zunehmenden relativen Molekülmassen ansteigen, da die Kristallisation infolge der geringeren Anzahl freier Endgruppen weitestgehend ungestört abläuft. Im weiteren Verlauf des Kristallisationsprozesses nimmt hingegen der Kristallinitätsgrad bei weiter wachsenden relativen Molekülmassen aufgrund der höheren Viskosität sowie der damit zusammenhängenden veränderten Kristallisationskinetik wieder ab. Somit übt die relative Molekül-

masse einen deutlichen Einfluss auf die Kristallisationsgeschwindigkeit und damit auch auf das Sphärolithenwachstum aus [Batzer1985]. In diesem Zusammenhang sind auch die Untersuchungen in [Kolesov1976] zu betrachten, in denen über die Abhängigkeit der elektrischen Durchschlagfestigkeit teilkristalliner Polymere von der Sphärolithengröße innerhalb der Molekularstruktur berichtet wird. So ist z. B. bei PE eine Verbreiterung der Molekülmassenverteilung mit einem geringeren Sphärolithenwachstum verbunden, das nachfolgend mit einer Erhöhung der Durchschlagfestigkeit einhergeht. Zum Abschluss der Ausführungen über die molekulare Struktur von PE bzw. LDPE sowie dessen prozessgebundene Gestaltungsmöglichkeiten erfolgt in Tabelle 1.1 eine Übersicht von Strukturparametern, die die molekulare und übermolekulare Ebene von teilkristallinen Polymeren charakterisieren.

Die in der Kabeltechnik eingesetzten verzweigten Polyethylene niedriger Dichte besitzen in der Regel eine Erweichungstemperatur von etwa 110 °C...115 °C sowie eine dauerhaft zulässige maximale Betriebstemperatur von 70 °C. Die verhältnismäßig niedrige Schmelztemperatur der kristallinen Bereiche von LDPE stellt im Fehlerfall ein erhöhtes Gefährdungspotential dar. So kann z. B. durch thermische Einwirkung infolge des Kurzschlussstromes die mechanische innere Stabilität des Kunststoffes deutlich abnehmen, da die mit steigender Temperatur einsetzende Veränderung der morphologischen Struktur letztlich bei Überschreitung der Kristallitschmelz-

¹ Hierunter versteht man die exakte räumliche Anordnung von Atomen und Atomgruppen eines Moleküls definierter Konstitution und Konfiguration unter Berücksichtigung von Anordnungen, die durch Rotation um Einfachbindungen ineinander umgewandelt werden können. Zur Überführung verschiedener Konformationen eines Moleküls ineinander ist also kein Bindungsbruch, sondern nur Rotation um Einfachbindungen erforderlich. Die Energiebarrieren zwischen Konformeren sind meistens so klein, dass eine Isolierung verschiedener Konformere nicht möglich ist.

temperatur einen Materialübergang in den amorphen und gleichzeitig fließfähigen Zustand herbeiführt. Vor diesem Hintergrund wurden in Verbindung mit der relativ niedrigen Dauerbetriebstemperatur Kabelisierungen aus VPE entwickelt. Durch die Vernetzung von PE kann ein vollständiges Erweichen des Materials bei hohen Temperaturen durch Querverbindungen zwischen den Hauptketten des Polymerisates unterbunden werden. Somit können einzelne Molekülketten nicht mehr ungehindert aneinander gleiten. Bei Überschreitung der Kristallitschmelztemperatur gelangt der Werkstoff nun nicht mehr in einen fließfähigen, sondern in einen thermoelastischen Zustand, wie anhand der Darstellung in Bild 1.3 verdeutlicht wird. VPE kann daher thermisch höher beansprucht werden als thermoplastisches PE. Infolgedessen steigt die zulässige Dauerbetriebstemperatur von Isolierungen aus VPE auf 90 °C an [Peschke1998, Smedberg2004a].

Die räumliche Vernetzung der Polyethylenmoleküle erfolgt bei Verwendung von LDPE als Basisisiermaterial für Mittel- und Hochspannungskabel chemisch unter Wärmeeinwirkung. Der Vernetzungsprozess wird dabei in der Regel durch die Beimischung von Dicumylperoxid sowie

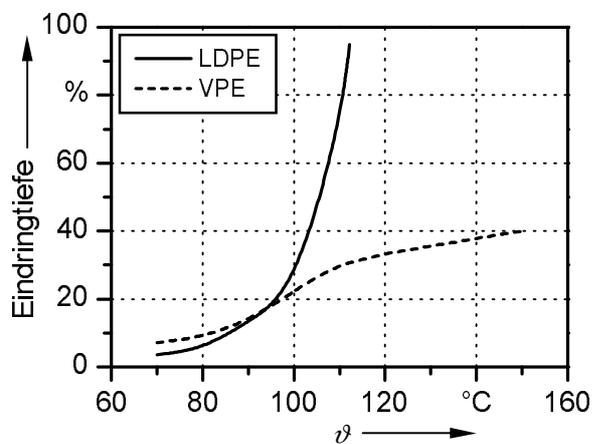


Bild 1.3: Prinzipielle Wärmedruckbeständigkeit von LDPE und VPE in Abhängigkeit von der Temperatur ϑ [Peschke1998]

ausreichend hohe Temperaturen von etwa 200 °C eingeleitet. Durch den damit verbundenen Zerfall des Peroxids werden Radikale gebildet, die im weiteren Verlauf der Vernetzungsreaktion Wasserstoff von Kohlenstoffverbindungen des Polymermoleküls bevorzugt an den durch die radikalische Polymersynthese von PE entstandenen Kurzkettenverzweigungen abspalten, da die Radikalbildung an diesen Stellen niedrigere Energien benötigt als in der ungestörten Kettenstruktur. An diesen durch Abspaltung frei gewordenen Valenzen können sich Querverbindungen zwischen den Molekülketten ausbilden, die letztlich eine räumliche Netzwerkstruktur erzeugen. Der Einsatz von Dicumylperoxid zur chemischen Vernetzung von PE hat sich weit verbreitet etabliert, da infolge einer relativ hohen Zersetzungstemperatur von etwa 130 °C eine verhältnismäßig ungefährliche Handhabung gegeben ist und nur eine minimale Vorvernetzung² stattfindet [Peschke1998, Smedberg2004a].

Der Einsatz von Dicumylperoxid zur chemischen Vernetzung von PE hat sich weit verbreitet etabliert, da infolge einer relativ hohen Zersetzungstemperatur von etwa 130 °C eine verhältnismäßig ungefährliche Handhabung gegeben ist und nur eine minimale Vorvernetzung² stattfindet [Peschke1998, Smedberg2004a].

In Abhängigkeit des verwendeten Peroxids entstehen bei der Vernetzungsreaktion niedermolekulare Spaltprodukte. Im Fall des Dicumylperoxids als Vernetzungskatalysator werden z. B. Acetophenon, Cumylalkohol, α -Methylstyrol und Methan erzeugt [Wagner1977]. Insbesondere Methan kann in niederviskosen Polymerschmelzen Blasenbildungen initiieren, so dass dessen Abdampfung üblicherweise durch ausreichenden Überdruck während der Vernetzung realisiert wird [Peschke1998]. Die Spaltprodukte Acetophenon und Cumylalkohol wirken aufgrund ihrer im Vergleich zu PE deutlich höheren Permittivitätszahlen infolge polarer Strukturen und der darüber hinaus wesentlich größeren Leitfähigkeit spannungsstabilisierend [Asmuth1982]. Sie weisen jedoch Schmelzpunkte im Bereich hiesiger Raumtemperaturen auf [Aida1990], so dass infolge des zwischen Polymervolumen und Umgebung existierenden Partialdruckgefälles ein

² Dieser Effekt wird auch als „scorch“ bezeichnet.

Diffusionsprozess der Spaltprodukte aus der Isolierung stattfindet. Infolgedessen nimmt die Konzentration dieser Bestandteile im Isolierstoffvolumen mit zunehmender Dauer ab. Dieser Vorgang kann durch Erhöhung der Probertemperatur beschleunigt werden [Scharff1990, Schiller1996]. In der Norm VDE 0276-605/A1 wird vor diesem Hintergrund für die Bestimmung der Anfangsfestigkeit im Rahmen der elektrischen Langzeitprüfung von polymerisierten Kabeln eine Konditionierung der Proben mit einer Leitertemperatur von 90 °C für die Dauer von sieben Tagen vorgeschrieben. Neben der Zugabe von Peroxiden zur chemischen Vernetzung des Basiscompounds enthält das angelieferte Fertiggranulat in der Regel Stabilisatoren zur Verlangsamung von thermisch-oxidativen Alterungsvorgängen [Peschke1998, Boström2002]. Diese auch als Antioxidantien bezeichneten Stoffe können z. B. aus maskierten phenolischen oder amini-schen Inhibitoren bestehen, die erst im Anschluß an den Vernetzungsvorgang demaskiert werden und somit eine Material schonende Vernetzung ermöglichen [Gentzkow1983].

Der Vernetzungsprozess erfolgt fertigungstechnisch unmittelbar im Anschluss an den Extrusionsvorgang. Dabei werden auf den vorgewärmten Leiterwerkstoff mit Hilfe eines Dreifach-spritzkopfes sowohl die Materialien für die innere und äußere Leitschicht als auch das Basiscompound für die Isolierung in einem Arbeitsgang aufgebracht. In der anschließenden Heizzone findet danach die Trockenvernetzung der Aderisolierung statt. Dabei wird heutzutage die Wärmeübertragung vom Vernetzungsrohr auf die Kabelader insbesondere bei VPE-Isolierungen für höchste Beanspruchungen durch eine unter erhöhtem Druck stehende Stickstoffatmosphäre realisiert [Boström1997]. Die Materialien für Leitschichten von VPE-isolierten Kabeln basieren aufgrund einer erforderlichen Füllstoffverträglichkeit üblicherweise aus Ethylencopolymerisaten mit Acrylanteil, wie z. B. Ethylen-Butyl-Acrylat (EBA) oder Ethylen-Ethyl-Acrylat (EEA), und realisieren vornehmlich eine Reduzierung lokaler Feldüberhöhungen sowie einen spaltfreien Kontakt zwischen Leiter und Dielektrikum.

Sie besitzen daher im Vergleich zu dem eingesetzten Basiscompound identische Wärmeausdehnungskoeffizienten, womit vergleichbare thermomechanische Eigenschaften von Isolierung und Leitschicht erzielt werden. Die zur Feldhomogenisierung benötigte ausreichende Leitfähigkeit wird durch Zugabe geeigneter Anteile sowie Arten von Ruß erreicht. Dazu werden Rußmengen von etwa 35 Gew.-% bis 40 Gew.-% zugemischt, wobei ein Dosierungsoptimum zwischen geforderter Leitfähigkeit einerseits und Homogenität, Elastizität und Extrudierbarkeit andererseits gefunden werden muss [Peschke1998]. Im Hinblick auf steigende Betriebsfeldstärken von VPE-isolierten Kabeln bei hohen Übertragungsspannungen (s. Bild 1.4) finden Leitschichtmaterialien, deren Oberflächenrauigkeit „supersmooth“ ist, Verwendung und tragen damit zu einer Erhöhung der Grenzflächenhomogenität zwischen Isolierung und Leitschicht bei, woraus letztlich auch eine Verbesserung der elektrischen Festigkeit resultiert [Burns1990, Boström2002].

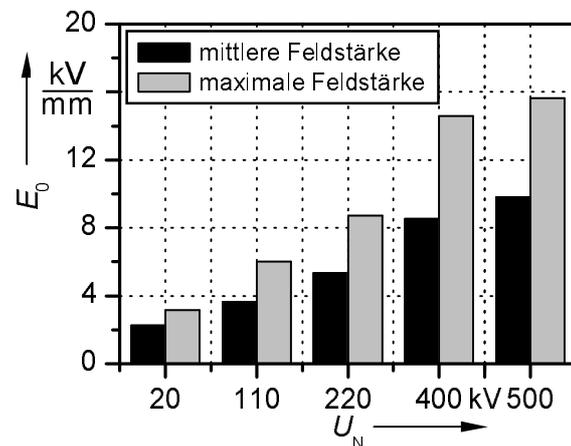


Bild 1.4: Betriebsfeldstärke E_0 von VPE-isolierten Kabeln in Abhängigkeit von der Nennspannung U_N [Peschke1998]

Vor dem Hintergrund der für die Herstellung von VPE-isolierten Kabeln notwendigen Fertigungsschritte sowie der für die elektrischen Eigenschaften unabdingbaren radialsymmetrischen Geometrie der Aderisolierung sind aus polymerwissenschaftlicher Sicht die Weiterentwicklung von Formulierungen für Isoliercompounds aus VPE hinsichtlich einer effizienteren Vernetzung und eines optimierten Fließverhaltens der Polymerschmelze von Bedeutung. So existieren heutzutage vernetzbare Basiscompounds mit sehr niedrigem Schmelzindex³ zur Reduzierung der Aderexzentrizität von entsprechend dickwandigen Kabeln [Borealis2004]. Durch Verbesserungen der Vernetzungseffektivität der Compoundformulierung kann die Fertigungsgeschwindigkeit von Kabeladern aus VPE gesteigert werden, da diese wesentlich von der für den Vernetzungsprozess benötigten Energiezuführung bestimmt wird. Großvolumige Isolierstoffausführungen von Hoch- und Höchstspannungskabeln weisen eine Wandstärke von ca. 30 mm auf, so dass unter Vermeidung von verfrüht einsetzenden thermischen Alterungseffekten eine ausreichend lange Verweildauer im Vernetzungsrohr optimiert werden muss [Peschke1998, Boström2002]. In Untersuchungen [Boström1997, Smedberg2004a] zum Einfluss von Vinylgruppen auf die Vernetzungsreaktion und den Extrusionsvorgang von Kabelcompounds wurden synthetisierte LDPE-Mischungen in Bezug auf den Vernetzungsgrad und „scorch“-Effekte analysiert. Dabei konnte gezeigt werden, dass durch die Polymerisation der zusätzlich eingebrachten Vinylgruppen die Vernetzungsdichte zunimmt, wobei deren Reaktivität zeitlich nur auf den Anfangsbereich der Vernetzungsreaktion begrenzt ist. Eine unerwünschte Vorvernetzung des Isoliermaterials trat durch die Modifikation des Basiscompounds nicht ein. Somit konnten höhere Fertigungsgeschwindigkeiten von großvolumigen VPE-Kabeladern erreicht werden.

Grundsätzlich kann die Netzwerkformation von Makromolekülen in unterschiedliche Vernetzungsstrukturen unterteilt werden. Dabei werden einerseits Vernetzungsknoten, die infolge einer peroxidischen Reaktion oder durch die Reaktion von Vinylgruppen entstehen, als chemische Vernetzung bezeichnet. Der Vernetzungsgrad bzw. die Vernetzungsdichte kann daher über die Menge des zugeführten Peroxids sowie die Vernetzungsdauer beeinflusst werden. Andererseits resultiert der überwiegende Anteil der Vernetzungsstellen in einem Netzwerk von VPE aus physikalischen Vernetzungen⁴, die in der Polymerschmelze naturgemäß vorhanden sind [Smedberg2004a]. Diese werden auch als Verhakungsnetzwerke charakterisiert und bestehen hauptsächlich aus Makromolekülen, die oberhalb einer kritischen Molmasse miteinander verschlungen sind. Vernetzungen aus physikalischen Netzwerken sind in der Regel reversibel, so dass durch Wärmezufuhr ein Aufbrechen der Vernetzungsstellen ermöglicht wird. Dadurch wird das Material im Gegensatz zu kovalent vernetzten Duromeren und Elastomeren thermoplastisch verformbar. Infolge von vermehrten physikalischen Verhakungen kann darüber hinaus das thermoelastische Verhalten von Polymeren verbessert werden [Lazár1990]. Wesentlich dafür sind allerdings vorhandene chemische Vernetzungsknoten, da durch sie ein Auseinandergleiten von Verhakungen unter Belastung effektiv verhindert werden kann [Smedberg2004b].

Weiterhin haben Untersuchungen zur Morphologie von VPE ergeben, dass durch eine peroxidische Vernetzung von LDPE kristalline Bereiche über lineare oder vernetzte „tie“-Moleküle ver-

³ Der Schmelzindex gibt diejenige Masse in g an schmelzflüssigem Kunststoff (Thermoplasten) an, die während einer Dauer von 10 min bei einer bestimmten Temperatur und unter einer bestimmten auf die Schmelze wirkenden Kraft durch eine genormte Düse gedrückt wird.

⁴ Bezeichnung für die Vernetzung eines makromolekularen Stoffes, die nicht unter Ausbildung chemischer Bindungen zustande kommt, sondern aus einer mehr oder minder beständigen, physikalischen Zusammenlagerung von funktionellen Gruppen oder Kettenabschnitten der Polymere resultiert.

bunden und in eine vernetzte amorphe Matrix eingebettet sind [Gulmine2004]. Als Evaluationsgrößen werden dabei die Kristallinität sowie die Vernetzungsdichte herangezogen. Das vernetzte Polymermaterial weist somit eine bimodale Verteilung von Vernetzungsstellen auf, wobei Langkettenverzweigungen, die einen ausgeprägten Einfluss auf das viskoelastische Verhalten des Polymeren besitzen, vorwiegend in kristallinen Regionen vorkommen und Kurzkettenverzweigungen auf amorphe Bereiche beschränkt sind. Letztere determinieren prinzipiell Polymereigenschaften wie Kristallinität, Kristallitschmelzpunkt, Härte und mechanisches Verhalten. Da eine Vernetzung von LDPE mit Peroxiden üblicherweise bei Temperaturen oberhalb der Kristallitschmelztemperatur T_m des Basispolymeren stattfindet, läuft die Vernetzungsreaktion vorwiegend im amorphen Zustand des Materials ab, wodurch die Formierung von Kristalliten verändert wird. Durch die infolge des Vernetzungsprozesses entstandenen Querverbindungen wird die Kettenfaltung der Makromoleküle beim Abkühlvorgang der Polymerschmelze behindert. Als Folge davon weisen vernetzte Polymere in der Regel eine geringere Kristallinität als unvernetzte Makromoleküle auf. Die durch Vernetzung verursachte Veränderung der Materialkristallinität spiegelt sich daher auch in Modifikationen der Kristallitschmelztemperatur, der Wärmekapazität sowie der Wärmeleitfähigkeit des Polymeren wider. Dabei wird zum einen die Schmelztemperatur der kristallinen Bereiche von zwei entgegengesetzt wirkenden und sich überlagernden Effekten bestimmt, wobei einerseits eine Reduktion der Lamellendicke aufgrund der Vernetzung eine Abnahme von T_m und andererseits eine Stabilisierung der Makromolekülanordnung durch die entstandenen Querverbindungen eine Zunahme von T_m verursacht. Zum anderen bewirken Vernetzungsstrukturen eine Erhöhung der Materialdichte, wodurch z. B. die mittlere freie Weglänge von Phononen⁵ und somit das Wärmeleitvermögen des Polymeren ansteigt. Im Gegensatz dazu weisen kristalline Strukturen eine höhere Wärmeleitfähigkeit als amorphe Phasen auf, so dass die Wärmekapazität mit abnehmender Kristallinität zunimmt [Lazár1990].

Hinsichtlich der Veränderung der übermolekularen Polymerstruktur infolge der Vernetzung von LDPE mittels Peroxiden zeigen Transmissionselektronenmikroskopien (TEM) kristallisierbarer Polymere, dass lamellare und sphärolithische Strukturen von LDPE-Materialien von Antioxidantien und peroxidischer Vernetzung beeinflusst werden. So führt z. B. die Zugabe von Antioxidantien des Typs *Santonox R* zu einer Veränderung der allgemeinen radialen sphärolithischen Lamellenanordnung hin zu parallel orientierten Strukturen und die Verwendung von Dicumylperoxid zu einer Abnahme der Lamellendicke. In der radialsymmetrischen Geometrie einer VPE-isolierten Kabelader stellt sich überwiegend eine senkrecht zum Kabelradius orientierte Lamellenstruktur ein, da infolge unterschiedlicher Abkühlungsverhältnisse innerhalb des Polymervolumens verschiedene Kristallisationsbedingungen existieren [Nilsson1998]. Darüber hinaus stellt sich aufgrund der Vernetzung bei VPE eine geringfügige Abnahme des Kristallinitätsgrades und der maximalen Kristallitschmelztemperatur gegenüber LDPE ein [Akermark1999].

Zum Abschluss der Beschreibungen über die molekularen Netzwerkformationen beim Vernetzungsvorgang von LDPE-Isolierungen mit Stabilisatoren zur Verzögerung thermisch-oxidativer Alterungsvorgänge wird an dieser Stelle noch auf eine Einsatzmöglichkeit von Antioxidantien in flüssiger Produktform hingewiesen, wodurch sich z. B. die Mischbarkeit mit Peroxid und die Dosierungsgenauigkeit verbessern lassen. Als Folge davon kann die Compoundierbarkeit bei

⁵ Unter Phononen sind Quasiteilchen zu verstehen, die zur Beschreibung von quantenmechanisch formulierten Gitterschwingungen in Kristallen angenommen werden. Sie existieren im gesamten Kristallgitter und lassen sich somit keiner bestimmten Stelle zuordnen.

geringeren Temperaturen erfolgen, so dass „scorch“-Eigenschaften verbessert und somit höhere Materialhomogenitäten erreicht werden können. Ein Einsatz flüssiger Systeme zur Stabilisierung gegen Oxidation schließt darüber hinaus das bei Ausführungen in fester Form vorhandene Risiko einer unvollständigen Lösung und Verteilung im Polymer aus, die bei der Verarbeitung zu Materialinhomogenitäten führen können [Kolb2003].

1.1.2 Kenndaten des verwendeten Modellkabels

Im Rahmen der experimentellen Untersuchungen wurde als Prüfobjekt das in Bild 1.5 exemplarisch dargestellte Modellkabel mit VPE-Isolierung eingesetzt, das bezüglich der Konstruktion, den verwendeten Leitschichten und dem Herstellungsprozess einem realen Hochspannungskabel aktuellen Fertigungsstandards sehr ähnlich ist. Dazu stand eine Trommellänge des Kabels von etwa 800 m zur Verfügung.

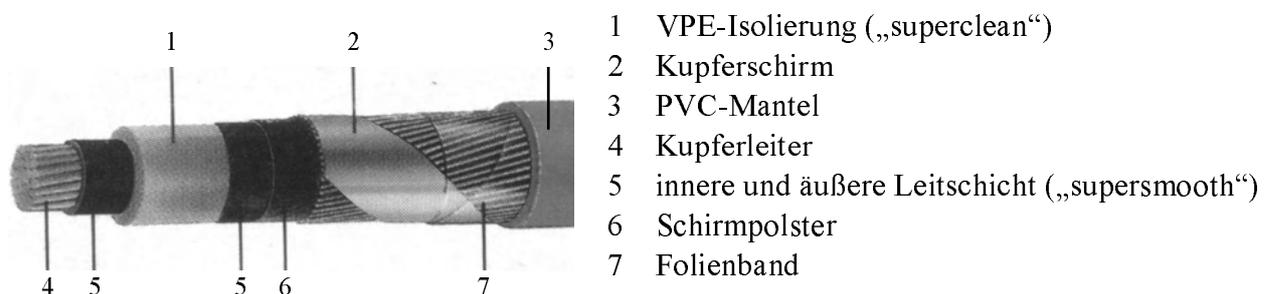


Bild 1.5: Verwendetes Modellkabel in Anlehnung an den Typ N2XSY 95 RM/16 6/10 kV

Die in der für die Kabelkonstruktion relevanten Norm VDE 0276/620 vorgegebene Mindestwandstärke von 2,96 mm wurde bei dem verwendeten Modellkabel unterschritten, um die Untersuchungen mit einem vertretbaren Aufwand an Prüfeinrichtungen durchführen zu können. Einige ausgewählte geometrische Abmessungen des Modellkabels sind in Tabelle 1.2 zusammengefasst.

Tabelle 1.2: Geometrische Kenndaten des eingesetzten Modellkabels

Größe	Einheit	Wert
r_a / r_i	mm/mm	9,15 / 6,40
w	mm	≈ 2,80
C'	pF/m	≈ 360

r_i = Innenradius

r_a = Außenradius

w = Isolierwandstärke

C' = spezifische Kapazität

Leitschichten desselben Grundmaterials in „supersmooth“ Qualität erfolgte eine chemische Trockenvernetzung mit Dicumylperoxid unter Zugabe von Antioxidantien. Aus dem Radienverhältnis lässt sich für eine zylindersymmetrische Geometrie nach

$$\eta_A = (r_i \ln(r_a / r_i)) / (r_a - r_i) \quad (1.1)$$

mit η_A : Ausnutzungsfaktor
 r_i : Innenradius
 r_a : Außenradius

mit den geometrischen Daten des Modellkabels ein Ausnutzungsfaktor von 0,83 ermitteln. Darüber hinaus kann als weitere wichtige Kenngröße des Prüfobjektes die spezifische Kapazität gemäß

$$C' = C/l = (2\pi\epsilon_0\epsilon_r) / \ln(r_a/r_i) \quad (1.2)$$

- mit C : Kapazität
 l : Länge
 ϵ_0 : Permittivität des Vakuums ($8,854 \cdot 10^{-12}$ As/Vm)
 ϵ_r : Permittivitätszahl (für VPE: 2,3)

bestimmt werden. Da einzelne physikalische Eigenschaften des Grundmaterials im Rahmen dieser Arbeit nicht separat ermittelt wurden, erfolgt an dieser Stelle eine auszugsweise Zusammenstellung von Kenndaten üblicher Materialmischungen VPE-isolierter Hoch- und Höchstspannungskabel, die Tabelle 1.3 entnommen werden kann.

Tabelle 1.3: Ausgewählte Kenndaten VPE-isolierter Hoch- und Höchstspannungskabel [Schaumburg1997, Peschke1998, Borealis2004]

Eigenschaft	Einheit	Prüfbedingungen	Wert
elektrische und dielektrische Eigenschaften			
dielektrischer Verlustfaktor	–	50 Hz / 20 °C	$0,3 \dots 0,5 \cdot 10^{-3}$
Permittivitätszahl	–	50 Hz / 20 °C	2,3...2,4
spezifischer Isolationswiderstand	$\Omega \cdot \text{cm}$	20 °C / 1 min	$> 10^{17}$
spezifischer Isolationswiderstand	$\Omega \cdot \text{cm}$	90 °C / 1 min	$10^{14} \dots 10^{16}$
maximale Stoßspannungsfestigkeit	kV/mm	20 °C / (1...5/50 μs)	130...200
mittlere Kurzzeitfestigkeit	kV/mm	50 Hz / 20 °C	45...70
mittlere Dauerspannungsfestigkeit	kV/mm	50 Hz / 20 °C / 40 a	> 15
physikalische und thermische Eigenschaften			
maximale Dauerbetriebstemperatur	°C	k. A.	90
maximale Kurzschlussstemperatur	°C	max. 5 s	250
spezifischer Wärmewiderstand	(K·m)/W	k. A.	3,5
Dichte (LDPE)	g/cm^3	Dichtegradientenrohr	0,918...0,934
Kristallinitätsgrad (LDPE)	%	k. A.	40...55
Zugfestigkeit	N/mm ²	k. A.	> 17

Abschließend sei erwähnt, dass es für Untersuchungen zum Alterungsverhalten von VPE-Isolierungen für Hochspannungskabel wichtig ist, ein konstruktiv vollständig aufgebautes Isoliersystem zu betrachten, da Alterungseffekte von vielen Parametern wie Kabelkonstruktion, Ausführung der Leitschichten, Reinheitsgrad des Dielektrikums, Vernetzungstechnik u. v. a. mehr beeinflusst werden.

1.2 Alterungsrelevante Faktoren und deren Wirkung auf den Isolationszustand von VPE

Unter dem Begriff Alterung sind allgemein irreversible chemische und physikalische Prozesse zu verstehen, die zeit- und beanspruchungsartabhängig zu Eigenschaftsveränderungen des Materials führen. Dabei ist in der Regel mit einem Alterungsvorgang ein Lebensdauerverbrauch des verwendeten Isoliermaterials verbunden. Als wesentliche Alterung auslösende Faktoren sind unter Ausschluss von Feuchte für VPE-Isolierungen im Hoch- und Höchstspannungsbereich elektrische, thermische sowie mechanische Beanspruchungen anzusehen, die in verschiedenen Kombinationen mit unterschiedlichen Zeitabhängigkeiten vorliegen können. Dabei ist jeweils eine weitere Unterteilung der einzelnen Gruppierungen vorzunehmen. Elektrische Beanspruchungen können hinsichtlich ihrer Amplitude und Frequenz, dem Vorliegen transientscher Überspannungen sowie innerer Teilentladungen und daraus resultierenden Effekten bezüglich der Ladungsträgerinjektion spezifiziert werden. Ebenso erweist sich bei thermischen Beanspruchungen eine Differenzierung im Hinblick auf die Maximaltemperatur, einen Temperaturgradienten über dem Isolierstoffvolumen sowie die äußeren Umgebungsbedingungen als nützlich. Im Fall mechanischer Beanspruchungen können Zug- oder Druckspannungen, Biegung, Torsion sowie zyklische Kompressionen die Alterungsrate der Isolierung vielfältig beeinflussen [Densley1994].

Eine Überlagerung mehrerer unterschiedlicher Beanspruchungsarten kann Synergieeffekte hervorrufen, deren kombinatorische Wirkungen die Geschwindigkeit von Alterungsvorgängen im Vergleich zu einer additiven Kopplung separater Alterungsfolgen deutlich verändern [Kahle1989, Densley1994]. Nach IEC 60505 kann eine Charakterisierung derartiger Synergien durch Modifikationen des Alterungsprozesses bei kombinatorischer Einprägung der Alterungsgrößen im Vergleich zu Alterungseffekten erfolgen, die von separatem Einwirken der verschiedenen Beanspruchungen verursacht werden. Alterungsvorgänge sind prinzipiell auf mit der Materialstruktur in- oder extrinsisch verbundene Mechanismen zurückzuführen, wobei auf dem Gebiet extrudierter Polymerisierungen für Energiekabel unter Betriebsbedingungen extrinsisch verursachte Alterungsmechanismen zu dominieren scheinen [Densley1994]. Darunter sind vorwiegend gasgefüllte Hohlräume, Verunreinigungen oder Feldüberhöhungen zu verstehen, deren Entstehung bereits beim Rohmaterial, bei der Verarbeitung während der Extrusion oder im Betrieb eingeleitet werden kann. Nur im Fall von vollkommener Materialreinheit und -homogenität sind Alterungseffekte in Kabelisolierungen auf intrinsische Mechanismen zurückzuführen.

Neben den zuvor beschriebenen irreversiblen Mechanismen existieren auch reversible Prozesse, deren Alterungseffekte erst durch davon abgeleitete Erscheinungen auftreten. So können Raumladungen in spannungslosen Phasen oder durch Polaritätsumkehr innerhalb eines Isolierstoffvolumens wieder abgebaut werden. Eine Rückbildung von Leitfähigkeitsveränderungen ist somit beispielsweise möglich. Aufgrund der durch Raumladungen beeinflussten elektrischen Feldverteilung innerhalb des Dielektrikums ist eine Überbeanspruchung lokaler Materialbereiche möglich, so dass infolgedessen eine irreversible Kavitätenbildung eintreten kann [Kahle1989]. Daher erfolgt im Anschluss eine Beschreibung

- der zu Raumladungen in polymeren Isolierstoffen führenden Effekte sowie
- von Ansätzen zur Hohlräumbildung auf nanometrischem Niveau,

die als wesentliche Stufen für das Verständnis von Alterung initiierenden Phänomenen von VPE-Isolierungen für Energiekabel aktueller Technologie betrachtet werden können. Danach schließt sich eine Darstellung relevanter Effekte hinsichtlich des thermisch-oxidativen Polymerabbaus, dessen Inhibierungsverhalten sowie Betrachtungen zum Stabilitätsverhalten von Antioxidantien unter Langzeitbeanspruchungen an.

1.2.1 Raumladungen

Raumladungen stellen eine aus weitestgehend unbeweglichen Ladungsträgern bestehende Ansammlung innerhalb des Isolierstoffvolumens dar, auf Grund dessen der geometrisch vorgegebene Verlauf des elektrischen Feldes verändert wird. Als Ursache für die Entstehung von Raumladungen können Effekte durch Ladungsträgertrennung, Polarisation oder Elektronenanreicherungs bzw. -verarmungsmechanismen im Isolierstoffvolumen angesehen werden. Im Fall von Polyolefinisierungen hat sich gezeigt, dass überwiegend Elektronenanreicherungsvorgänge zur Raumladungsbildung führen [Weißenberg1999]. Relevante Ladungsträger können dabei in verschiedenen energetisch lokalisierten Zuständen („traps“) gespeichert und abgegeben werden. Somit weisen die maßgebenden Mechanismen zeitlich unterschiedliche Aktivitäten auf, so dass durch sie verursachte Schädigungsprozesse der Materialstruktur in komplexer Weise superponieren. Die Prozesse, die zum Aufbau von Raumladungen führen, sind stark feldabhängig. Daher verursacht eine Rückwirkung der Raumladungen auf das lokale elektrische Feld eines Volumenbereiches prinzipiell dessen Kopplung mit den initialen Aufbau Mechanismen. Darüber hinaus sind auch die Zeitkonstanten für Speicher- und Transportvorgänge hinsichtlich des Risikopotenzials für den Isolierwerkstoff von Bedeutung [Schneider1996].

Die Feldbeeinflussung wird vorwiegend von der Polarität sowie der örtlichen Verteilung und Konzentration der Raumladung bestimmt. In VPE-Isolierungen für Energiekabel bauen sich aufgrund der materialeigenen Elektronegativität ausgehend vom Kontaktbereich zwischen den Leit-

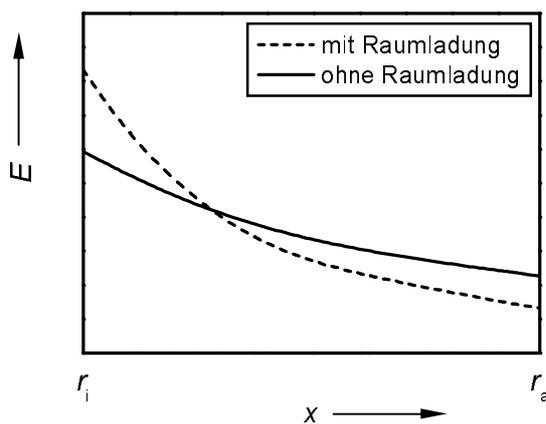


Bild 1.6: Schematische Darstellung des Feldverlaufs einer zylindersymmetrischen Kabelanordnung mit und ohne Raumladungsbildung [Peschke1998]

schichten und der Isolierung bei elektrischer Wechselfeldbeanspruchung allmählich Zonen mit negativem Ladungsüberschuss im Dielektrikum auf, die auch als so genannte Elektronenanreicherungszone bezeichnet werden [Peschke1998]. Bei Gleichspannungsbeanspruchung erfolgt dieser Vorgang nur einseitig von der Kathode aus in einem wesentlich geringeren Zeitfenster. Infolge der inhomogenen Feldverteilung aufgrund der zylindersymmetrischen Kabelgeometrie stellt sich bei Wechselfeldbeanspruchung eine unsymmetrische Raumladungsbildung im Dielektrikum von polymerisierten Energiekabeln ein. Der Ausbau einer negativen Raumladungszone erfolgt dabei in der Nähe des Innenleiters stärker ausgeprägt als im Bereich des Kabelschirms, da hier die elektrische Feldstärke geringer ist und somit weniger Elektronen

injiziert werden können. Während der positiven Halbwelle der anliegenden Wechselfeldspannung entsteht daher eine Feldüberhöhung im elektrisch höher beanspruchten Innenleiterbereich der

Isolierung. Bild 1.6 zeigt dazu schematisch den Feldverlauf einer zylindersymmetrischen Kabelanordnung zwischen den die Isolierung begrenzenden Radien r_i und r_a mit und ohne Raumladungsausbildung. Aufgrund des geometrisch eingepprägten elektrischen Feldes infolge von Raumladungseffekten kann sich dabei eine Verdopplung der resultierenden Feldstärke im an die innere Leitschicht angrenzenden Isolierstoffvolumen einstellen.

Somit sind dielektrische Alterungseffekte polymerer Isolierstoffe im Zusammenhang mit dem Aufbau von Raumladungen innerhalb des Isolierstoffvolumens zu betrachten. In Bild 1.7 sind diesbezüglich prinzipielle Beziehungen zwischen verschiedenen Beanspruchungsparametern und

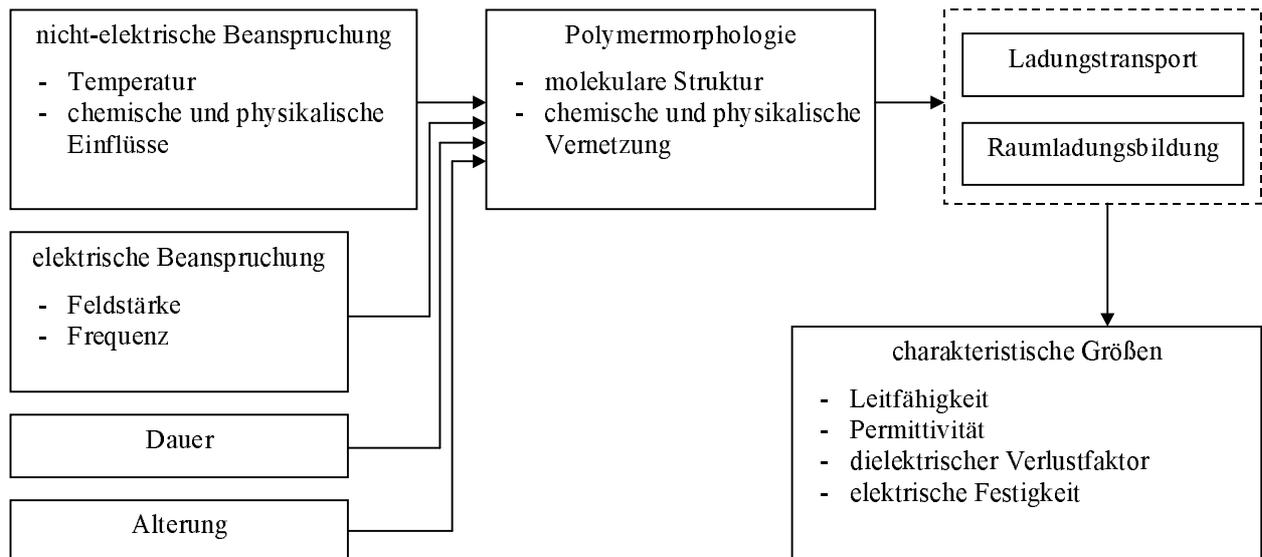


Bild 1.7: Dielektrische Phänomene teilkristalliner Polymere [Krause1989]

charakteristischen Größen elektrischer Eigenschaften schematisch dargestellt. Dabei ist zu berücksichtigen, dass aufgrund komplexer Wechselwirkungen verschiedener Alterungsparameter untereinander sowie in Kombination mit der Polymermorphologie der Ladungstransport und die Ladungsspeicherung innerhalb des Isolierstoffvolumens und an den Kontaktflächen zwischen Elektroden und Dielektrikum beeinflusst werden. Diese Interferenz wirkt sich wiederum auf die ursächlichen Initialgrößen aus, so dass vielfältige Parametersuperpositionen das Aufzeigen einzelner Effekte separater Einflussgrößen hinsichtlich dielektrischer Alterungsvorgänge wesentlich erschweren.

Teilkristalline Polymere wie VPE können aufgrund ihrer inhomogenen anisotropen Molekularstruktur an makroskopischen Grenzflächen innerhalb ihres Materialvolumens zwischen unterschiedlichen Phasen, die z. B. durch amorphe und kristalline Domänen beschrieben werden können, einen Raumladungsaufbau infolge unterschiedlicher Permittivitätszahlen und Leitfähigkeiten der jeweiligen Bereiche aufweisen. Derartige Ladungsansammlungen beeinflussen auch den Verlauf des elektrischen Feldes innerhalb des Isolierstoffes und äußern sich in dielektrischen Verlusten, die ein ähnliches Verhalten besitzen wie Verluste aufgrund ionischer oder dipolarer Relaxationsphänomene [Bartnikas1983].

Weitere Angaben hinsichtlich der in der Literatur diskutierten Ansätze zur Raumladungsbildung sowie zu Modellvorstellungen, die eine Beschreibung von Ladungsträgerzuständen auf der Basis energetischer Formulierungen nutzen, sind Kapitel 3.3.2 zu entnehmen.

Eine etwas andere Ansicht hinsichtlich der Erzeugung von Raumladungen in realen dreifach extrudierten Polymerisierungen für Energiekabel wird in [Boggs1998] vertreten. Dort werden Raumladungen, die aufgrund von Feldüberhöhungen entstehen, als zu kompakt und somit nicht direkt messbar betrachtet. Darüber hinaus scheinen durch Polarisierungseffekte innerhalb des Isolierstoffvolumens verursachte Raumladungen zu willkürlich verteilt zu sein, als dass sie korrekt identifiziert werden können. Es wird daher die Ansicht vertreten, dass Raumladungen vielmehr durch inhomogene Leitfähigkeiten innerhalb des Isolierstoffes initiiert werden. Als Ursache dafür können Oberflächenoxidationseffekte und Interdiffusionen⁶ betrachtet werden. Interdiffusionseffekte treten zwischen den Leitschichtmaterialien und dem Isolierstoff auf und erhöhen die Leitfähigkeit des Dielektrikums im Grenzschichtbereich zwischen den beiden Werkstoffen, wobei Interdiffusion im Bereich der Adhäsion von Polymeren dann vorliegt, wenn die jeweiligen Polymermoleküle eine ausreichend hohe Beweglichkeit besitzen, um sich in der Grenzschicht gegenseitig zu durchdringen.

Neben der vorangegangenen Beschreibung des Einflusses von Raumladungen auf dielektrische Alterungserscheinungen sind durch ausreichend hohe Wechselfeldbeanspruchungen verursachte Veränderungen der Polymorphologie, die durch die Bildung von Mikrohöhlräumen charakterisiert werden, von Bedeutung für das Verständnis von Alterungserscheinungen polymerer Isolierstoffe sowie deren Initiierung [Parpal1997]. Aktuelle Ausblicke hinsichtlich der zukünftigen Forschungsaktivitäten auf dem Gebiet der festen Isolierstoffe zeigen, dass Bewertungen von Alterungsmechanismen auf nano- und mesometrischer Ebene viel versprechende Ansätze zum Verständnis der Lebensdauerproblematik darstellen, wobei im Hinblick auf relevante Effekte zwischen den Phasen nanometrischer Initiierung von Alterungsvorgängen und mikrometrischer Degradationserscheinung, die in Teilentladungen und der Bildung bäumchenartiger Strukturen („electrical treeing“) resultiert, zurzeit eine Wissenslücke vorliegt [Laurent2005].

1.2.2 Nanometrische Hohlräumbildung

Die Bildung von Hohlräumen auf nanometrischem Niveau, die auch als Nanokavitäten bezeichnet werden, sowie der Aufbau von Raumladungen beeinflussen das Leitungsverhalten teilkristalliner Polymere und stellen somit wichtige Stufen im Verständnis dielektrischer Alterungseffekte dar. Nanokavitäten charakterisieren physikalische Defekte, die durch Feld induzierte elektrische Beanspruchungen des Isoliermaterials entstehen. Sie unterscheiden sich von herstellungsinhärenten Mikrokavitäten nicht nur durch ihre geringere Größe, sondern auch dadurch, dass sie im Wesentlichen lokale Ausdehnungen der Polymermatrix charakterisieren, die zu Zonen geringerer Dichte sowie das freie Polymervolumen vergrößernde Leerstellen führen [Crine2005].

Eine wichtige Größe zur Beschreibung der Struktur teilkristalliner Polymere stellt das freie Volumen dar. Es charakterisiert die Differenz zwischen dem makroskopischen Polymervolumen und dem darin von Molekülen besetzten Volumen. Darüber hinaus wird eine weitere Unterteilung in das interstitielle bzw. Expansionsvolumen und das freie Lochvolumen vorgenommen. Dabei repräsentiert das freie Lochvolumen bei teilkristallinen Polymeren eine zusätzliche Differenz hinsichtlich des Gesamtvolumens. Dieses Volumen fasst Hohlräume innerhalb der Polymer-

⁶ Die technologische Entwicklung führt zu komplexeren, teilweise aus mehreren Komponenten bestehenden, Materialien, zu höheren Einsatztemperaturen und kleineren Dimensionen der Bauteile. Damit werden Reaktionen zwischen den einzelnen Komponenten sowie dadurch bedingte Eigenschaftsänderungen immer wahrscheinlicher. Die an den Reaktionen beteiligten Atome werden durch Interdiffusionsprozesse an die Grenzflächen zwischen den Komponenten transportiert.

struktur im Nanometerbereich oder noch kleinerer Abmessungen zusammen [Batzer1985, Schaumburg1997].

Zur genaueren Untersuchung von Feld induzierten morphologischen Veränderungen des Polymergefüges infolge von elektrischen Beanspruchungen erscheint es nach [Jones2005] notwendig, weitere Detailkenntnisse hinsichtlich der Polymorphologie auf submikrometrischem Level zu erlangen. Ein geeignetes Verfahren dazu stellt die Positronen-Annihilations-Spektroskopie (PAS) dar, die als experimentelle Methode zur direkten Bestimmung des freien Volumens teilkristalliner Polymere im Nanometerbereich angewendet werden kann. Eine genauere Vorstellung dieser Spektroskopietechnik erfolgt in Kapitel 2.2.1.

Durch Feld induzierte elektrische Beanspruchungen verursachte Modifikationen der Polymorphologie können bei Polyolefinisierungen für Energiekabel ab elektrischen Wechselfeldstärken von etwa 10 kV/mm initiiert werden. Dabei wird angenommen, dass kleine zyklische Deformationen innerhalb der polymeren Kettenstruktur zum Aufbrechen von *Van-der-Waals*-Bindungen⁷ durch schwach energetische Elektronen führen. Damit entstehen aufgrund molekularer Kettenverschiebungen lokale Veränderungen des freien Volumens, wodurch so genannte Submikrohohlräume gebildet werden. Deren Entstehung findet bevorzugt in amorphen Bereichen teilkristalliner Polymere statt und kann Größenordnungen von etwa 10 nm aufweisen. Als wesentliche Parameter werden die Aktivierungsenergien einzelner Deformationsprozesse molekularer Kettenstrukturen sowie die maximale Ausdehnung von Submikrohohlräumen betrachtet, wobei diese Größen Abhängigkeiten von der Amplitude und der Frequenz des einwirkenden elektrischen Feldes, der Temperatur sowie der Polymorphologie besitzen [Parpal1997]. Unterstützt wird die Generierung von Defektstrukturen dadurch, dass teilkristalline Polymere empfänglich für senkrecht zur Achse der interlamellaren Zonen orientierte Zugbeanspruchungen und insbesondere ionisierte molekulare Verunreinigungen an die Polymerstruktur über Sekundärbindungen gekoppelt und vorwiegend auf amorphe Materialbereiche beschränkt sind [Jones2005].

Zur Veranschaulichung von submikrometrischen Strukturen zeigt Bild 1.8 eine transmissionselektronenmikroskopische (TEM) Aufnahme von VPE. Die Nutzung der TEM-Technik für hochauflösende Untersuchungen der Polymerstruktur im Nano- und Mikrometerbereich wird ausführlicher in Kapitel 2.2.2 beschrieben. Jedoch soll an dieser Stelle erwähnt werden, dass aufgrund der notwendigen Probenkontrastierung amorphe Zonen im Aufnahmebild dunkler erscheinen als kristalline Bereiche.

Die physikalisch eng mit der Entstehung nanometrischer Hohlraum- bzw. Defektstrukturen verbundene Polymorphologie ist hinsichtlich ihres Ordnungszustandes z. B. bei Temperatur- und Druckänderungen vielfältigen superponen Veränderungen unterlegen. So ist beispielsweise eine Ordnungsumwandlung teilkristalli-

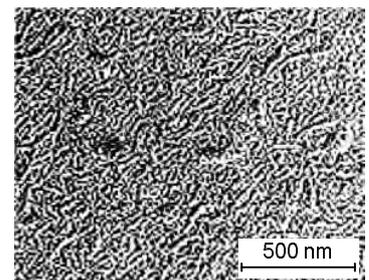


Bild 1.8: Exemplarische TEM-Aufnahme von VPE

⁷ *Van-der-Waals*-Bindungen werden von zwischenmolekularen Kräften herbeigeführt, wobei ein Molekül mit einer beliebig großen Anzahl von Partnern gleichzeitig in Wechselwirkung treten kann, sofern dies räumliche Ansprüche der einzelnen Moleküle nicht verbieten. Im Wesentlichen beruhen *Van-der-Waals*-Bindungen auf elektrischen Wechselwirkungen von Ladungsverteilungen der Monomere. Dabei können elektrostatische Wechselwirkungen permanenter elektrischer Momente und indirekte Wechselwirkungen infolge gegenseitiger Polarisierung von Ladungsverteilungen unterschieden werden.

ner Polymere durch Schmelzvorgänge nicht eindeutig hinsichtlich allgemein akzeptierter Umwandlungstypen zu erfassen, da das Schmelzen und Kristallisieren von Makromolekülen in komplexer Weise von verschiedenen Effekten beeinflusst wird. Dazu sind vor allem Mischungs- und Oberflächenvorgänge zu zählen. Darüber hinaus trägt auch das Fehlen einer nicht autonomen Grenzphase, die von teilkristallinen Kettenmolekülen nicht zwingend erzeugt wird, zur Komplexität bei. Die Teilkristallinität erweist sich oft als gehemmter Gleichgewichtszustand des Polymeren, der z. B. bei Erwärmung irreversible Änderungen wie Rekristallisationsvorgänge erfährt. Eine Lokalisation dieser Domänen ist von der Materialvorgeschichte sowie der äußeren Beanspruchung abhängig [Batzner1985].

Der Erkenntnis hinsichtlich der Bedeutung von Alterungseffekten polymerisolierter Energiekabel aufgrund von Raumladungs- und Hohlraumbildung folgend, fanden sich in den Jahren 1998 bis 2002 Materialhersteller, Kabelwerke, Energieversorgungsunternehmen und Universitäten in einem europäischen Forschungsverbund zusammen, um vor dem Hintergrund eines ansteigenden Bedarfs an Energiekabeln mit VPE-Isolierungen für den Höchstspannungsbereich im Rahmen des ARTEMIS⁸-Projektes Diagnosemethoden zur Bestimmung der Anfälligkeit polymer Kabelisolierungen hinsichtlich elektrischer Alterungsphänomene zu entwickeln und Bewertungskriterien des aktuellen Isolationszustandes einzuführen. Die Initiierung dazu wurde aus der Tatsache abgeleitet, dass nur eine Vielzahl von Erfahrungswerten auf diesem Gebiet aus Untersuchungen an VPE-isolierten Energiekabeln mit maximalen elektrischen Feldstärkebeanspruchungen bis etwa 7 kV/mm und heutzutage nicht mehr verwendeten Isolierstoffmischungen vorliegen, die die aktuelle Situation mit elektrischen Beanspruchungen bis zu 16 kV/mm und hochreinen, vernetzungsoptimierten Isoliercompounds nur noch sehr bedingt widerspiegeln. Im Ansatz wurde dabei ausgehend von einer örtlich begrenzten im Isolierstoff in energetisch lokalisierten Zuständen vorhandenen Konzentration an Raumladungen eine lokale Veränderung der Polymermorphologie vermutet, die bei Erreichen einer kritischen Größe zur Hohlraumbildung mit substantieller Teilentladungsentwicklung und „electrical treeing“ führen kann. Als wesentliche Ergebnisse der Untersuchungen konnte festgestellt werden, dass Alterungsbeanspruchungen von elektrischen Wechselfeldstärken bis zu 30 kV/mm, Temperaturen von 90 °C sowie Versuchszeiten von 6000 h nicht zu einer registrierbaren Materialdegradation führen [Laurent2003].

Tabelle 1.4: Störstellen und ihre Auswirkungen in polymerisolierten Kabeln [Peschke1998]

Art der Störstelle	Ort der Feldüberhöhung	Gefahren
Leitfähiger Einschluss	beliebig; abhängig von der Kontur	- lokale elektrische Überlastung - Hohlraumbildung bei Erwärmung - Teilentladungen
Isolierender Einschluss	keine	- Hohlraumbildung bei Erwärmung - Teilentladungen
Hohlraum	im Hohlraum	- Teilentladungen im Hohlraum
Protrusion	beliebig; abhängig von der Kontur	- lokale elektrische Überlastung

⁸ ARTEMIS steht für „Ageing and Reliability Testing and Monitoring of Power Cables - Diagnosis for Insulation Systems“.

Die Bildung von Raumladungen sowie sehr kleinen Hohlräumen ist wesentlich von der elektrischen Feldstärke abhängig. Daher dürfen die betriebsbedingt vorgegebenen elektrischen Beanspruchungen nicht durch materialinhärente Verunreinigungen beeinflusst werden. In Tabelle 1.4 ist zu dieser Problematik eine Übersicht von Störstellenarten und den daraus resultierenden Gefahren für den Isolierstoff angegeben.

Hinsichtlich der für Energiekabelanwendungen im Hoch- und Höchstspannungsbereich relevanten Größenabmessungen von Verunreinigungen werden üblicherweise Dimensionen von weniger als 100 μm gefordert, um unzulässige Feldüberhöhungen zu vermeiden. Eine Prüfung [Kamimaga1997] an aktuellen VPE-Isoliercompounds für den 500 kV-Bereich zeigte, dass die real ermittelten Größenabmessungen nicht leitender Verunreinigungen in Bereichen deutlich unterhalb von 100 μm liegen. Aufgrund der Tatsache, dass die Permittivitätszahl von VPE durch hohe thermische Beanspruchungen mit Temperaturen von bis zu 200 $^{\circ}\text{C}$ in der Regel Werte zwischen 2 und 4 aufweist, wurden in [Boström2002] Untersuchungen hinsichtlich des Einflusses von Verunreinigungen unterschiedlicher Permittivitätszahlen und verschiedener Geometrien auf die Überhöhung des elektrischen Feldes durchgeführt, wobei als Störstellengeometrie eine Ellipsenform angesetzt wird. Unter Anwendung der Beziehungen

$$\eta_F = 1 - 1/\alpha \left(0,5 \ln(\lambda + 1/\lambda - 1) - \lambda/\lambda^2 - 1 \right) \quad (1.3)$$

$$\text{mit } \alpha = 0,5 \ln(\lambda + 1/\lambda - 1) - 1/\lambda + 1/((\epsilon_2/\epsilon_1 - 1)\lambda(\lambda^2 - 1))$$

$$\lambda = 1/\sqrt{1 - R/a}$$

- R : Ellipsen-Spitzenradius
- a : längere Ellipsen-Halbachse
- ϵ_1 : Permittivitätszahl von VPE (2,3)
- ϵ_2 : Permittivitätszahl der Verunreinigung

zeigen die in Bild 1.9 dargestellten Kurvenverläufe des Feldüberhöhungsfaktors η_F für verschiedene Kombinationen aus Permittivitätszahl der Impurität sowie deren Geometrie, dass spitze, filamentförmige Abmessungen von isolierenden Verunreinigungen mit Permittivitätszahlen zwischen etwa 2,3 und 4,5 zu Feldüberhöhungen um bis zu Faktor 2 führen können. Damit ist eine Beeinflussung der Initialbedingungen für Raumladungs- und Hohlraumbildungsmechanismen zu erwarten.

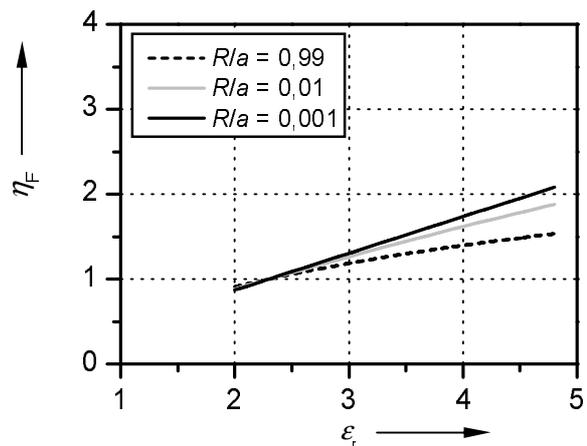


Bild 1.9: Feldüberhöhungsfaktor η_F in Abhängigkeit von der Permittivitätszahl ϵ_i der Verunreinigung für verschiedene Geometrien [Boström2002]

Die Entstehung von Submikrohohlräumen innerhalb des Polymervolumens wird grundsätzlich durch Einwirkung äußerer mechanischer Beanspruchungen begünstigt. Darüber hinaus können insbesondere bei teilkristallinen

Polymeren mechanische Beanspruchungen auch im Inneren infolge langsamer Kristallisationen in amorphen Bereichen entstehen. Der Prozess der Nachkristallisation kann bei Umgebungsbedingungen mehrere Jahre andauern, wobei daraus resultierende Zunahmen lokaler Materialdichten durch Bildung von Mikrohohlräumen und Diskontinuitäten kompensiert werden, da von einer Volumenkonstanz fester Isolierstoffe auszugehen ist [Dissado1992]. Nachkristallisationseffekte werden durch ein gegenüber Umgebungsbedingungen erhöhtes Temperaturniveau beschleunigt.

Zum Abschluss der Ausführungen über alterungsrelevante Faktoren für VPE-Isolierungen für Energieübertragungskabel wird im Folgenden die Problematik thermisch-oxidativer Polymerdegradation näher erläutert.

1.2.3 Thermisch-oxidative Polymerdegradation

Polyolefine sind unter Ausschluss von Sauerstoff verhältnismäßig gut gegenüber einem thermischen Abbau beständig. Die Zersetzung beginnt erst oberhalb von etwa 280 °C. In Gegenwart von Sauerstoff setzt der Polymerabbau⁹ hingegen schon bei deutlich niedrigeren Temperaturen ein und kann mit zunehmenden Beanspruchungstemperaturen beschleunigt werden. Aufgrund der Beanspruchung mit Wärme und Sauerstoff unterliegen Thermoplaste einem thermisch-oxidativen Polymerabbau, der sich in der Spaltung von Polymermolekülen unter Bildung niedermolekularer Reaktionsprodukte äußert und autoxidativ abläuft [Krebs1999]. Auf Grund dessen verändert sich die molekulare Polymerstruktur infolge von Kettenabbau, Kettenverzweigungen oder Vernetzungen, wodurch die physikalischen Eigenschaften des Kunststoffes beeinflusst werden. Dabei können sich z. B. durch abhängige Additionsreaktionen von Vinylgruppen höhere Doppelbindungsgehalte im Polymer einstellen, die wiederum ein ansteigendes Vernetzungspotenzial und eine große Gefährdung hinsichtlich des thermisch-oxidativen Abbaus verursachen [Kolb2003]. Die Autoxidation¹⁰ von Polymeren kann durch folgende Entwicklungsstufen beschrieben werden [Krebs1999]:

- Startphase (Erzeugung von Primärradikalen),
- Fortpflanzungsphase (Bildung von Reaktionsprodukten),
- Verzweigungsphase und
- Abbruchphase (Vernichtung der neu gebildeten radikalischen Reaktionsprodukte).

Als Ausgangspunkt für den Abbau wird die Auslösung eines Wasserstoffatoms aus der Polymerkette durch Energieeintrag betrachtet, auf Grund dessen primäre Alkylnradikale gebildet werden. Diese reagieren mit Sauerstoff und bilden dabei Peroxyradikale, die weitere Wasserstoffatome abstrahieren können [Kolb2003]. Die Herkunft primärer Alkylnradikale kann vielfältiger Art sein. Einerseits kann das Polymer selbst direkt angegriffen werden, andererseits können Verunreinigungen zur Bildung von Radikalen führen. Dabei ist zwischen Fehlstellen der Polymerkette, wie z. B. Carbonyl- oder Hydroperoxidgruppen und herstellungsbedingten Verunreinigungen in Form von Katalysatorresten oder Initiatoren zu unterscheiden. Da Oxidationsprozesse diffusionskontrolliert verlaufen, beeinflussen geometrische und morphologische Polymerstrukturen die

⁹ Der Abbau von Polymeren beschreibt die Spaltung kovalenter Bindungen sowie die Verringerung des Polymerisationsgrades. Er kann durch die Umkehrung Polyaddition oder Polykondensation erfolgen oder durch die Umkehrung der Polymerisation hervorgerufen werden [Römpf2005].

¹⁰ Generelle Bezeichnung für die Oxidation einer chemischen Verbindung durch atmosphärischen Sauerstoff

Folgen oxidativen Umsatzes [Batzer1985]. Diese Materialheterogenitäten zeigen sich darüber hinaus auch in reaktionskinetischen Betrachtungen des Oxidationsverlaufes. Auf eine Beschreibung der im Zusammenhang mit thermisch-oxidativen Prozessen relevanten chemischen Reaktionsgleichungen und Strukturformeln wird an dieser Stelle verzichtet und auf einschlägige Literatur zu dieser Thematik verwiesen, wie z. B. [Zweifel1998, Krebs1999].

Bei Polyolefinisierungen für Energiekabelanwendungen werden dem Isolierstoff Antioxidantien beigelegt, die in den Mechanismus des autoxidativen Abbaus inhibierend eingreifen. Dabei werden primäre Stabilisatoren, die eine vorwiegend kettenabbrechende Funktion besitzen und in der Praxis oft durch sterisch gehinderte Phenole, sekundäre aromatische Amine oder sterisch gehinderte Amine realisiert werden, und sekundäre Antioxidantien unterschieden. Die Sekundärstabilisatoren dienen zur Wirkungsverstärkung der primären Antioxidantien und basieren vornehmlich auf nicht radikalischen Zersetzungsmechanismen von Hydroperoxiden. Durch geeignete Kombinationen primärer und sekundärer Antioxidantien kann durch Synergieeffekte eine Verbesserung der Gesamtwirkung erreicht werden. Die Schutzwirkung von Antioxidantien ist jedoch von der Temperatur abhängig, so dass eine Wirkungsoptimierung von Stoffkombinationen über einen weiten Temperaturbereich anzustreben ist. Darüber hinaus wird der Stabilisierungseffekt verschiedener Antioxidantien erheblich vom Sauerstoffangebot beeinflusst, das hingegen wesentlich vom Diffusionsverhalten des zur Verfügung stehenden Sauerstoffes determiniert wird. Dabei kann es bei großen Materialwandstärken zu Depotwirkungen hinsichtlich der Stabilisierung kommen [Krebs1999].

Die Wanderung niedermolekularer Stoffe in Polymermatrizen wird allgemein als Permeation bezeichnet. Dabei wird der Durchgang von Molekülen durch ein Polymervolumen in einzelne Ablaufmechanismen unterteilt, die als Adsorption, Absorption, Dissolution, Diffusion, Desorption und Ausdampfen bezeichnet werden. Der Transportvorgang beruht vorwiegend auf aktivierter Diffusion, die im Wesentlichen von der Polymerstruktur, der Temperatur, der Molgröße der Substanz und Wechselwirkungen zwischen diffundierendem Stoff und Polymer abhängt. In teilkristallinen Kunststoffen werden aktivierte Diffusionsvorgänge durch kristalline Bereiche sowie Vernetzungen signifikant behindert [Krebs1999]. Diesbezüglich stellte sich heraus, dass Oxidationseffekte in kristallinen Bereichen durch Antioxidantien nur wenig beeinflusst werden. Somit erfolgt eine Oxidationsinhibierung durch Stabilisatoren vorwiegend in amorphen Zonen, da hier günstigere Bedingungen für die Dispersion der Additive vorliegen. Weiterhin ist von einer verminderten Zufuhr von Sauerstoff in kristallinen Domänen auszugehen [Iida1987]. Bei Materialbeanspruchungen mit höheren Temperaturen kann jedoch infolge von thermischen Bewegungen einzelner Molekülsegmente das freie Volumen verändert werden, so dass Transportvorgänge niedermolekularer Substanzen im Vergleich zu Normaltemperaturbedingungen erleichtert werden [Krebs1999]. Strukturelle Änderungen der molekularen Anordnung unter- und oberhalb der Kristallitschmelztemperatur T_m weisen prinzipiell Unterschiede auf. Materialdegradation bei Temperaturen unterhalb T_m sind wesentlich auf amorphe Zonen innerhalb der teilkristallinen Polymerstruktur begrenzt [Wolter1987].

Hinsichtlich einer analytischen Beschreibung kann das Diffusionsverhalten von Molekülen mit geringem Molekulargewicht prinzipiell auf der Basis fraktionierter freier Volumina betrachtet werden, wodurch eine differenzierte Formulierung des komplexen Stabilisierungsverhaltens von Thermoplasten mit Antioxidantien möglich ist. Die Komplexität wird durch Veränderungen der Polymermorphologie und der Polarität infolge von thermisch-oxidativen Alterungseffekte verur-

sacht, und Antioxidantien unterliegen Abwandlungen aufgrund von Reaktionen mit reaktiven Oxidationsprodukten, so dass daher eine dynamische Prozesskinetik entsteht, die eine Lebensdauer vorhersage wesentlich erschwert [Zweifel1998].

Die Vielschichtigkeit der Polymerstabilisation ist weiterhin darauf zurückzuführen, dass die Materialdegradation teilkristalliner Polymere durch thermisch-oxidative Alterungsbeanspruchungen grundsätzlich ein heterogenes Prozessgefüge darstellt. Die dem Basispolymeren zugefügten Antioxidantien enthalten in der Regel polare Gruppen, die eine Beeinflussung der Löslichkeit des Stabilisators im Polymeren von der Polymermatrix und der Art des Stabilisators hervorrufen. Darüber hinaus weist die Löslichkeit ein umgekehrt proportionales Verhalten zum Kristallisationsgrad des Makromoleküls auf. Der Verbrauch von Antioxidantien wird durch physikalische Verluste aufgrund von Diffusionsvorgängen sowie Reaktionen mit Autoxidationsprodukten herbeigeführt [Zweifel1998].

Erkenntnisse aus Untersuchungen an vollständigen Energiekabelisierungen zeigen, dass die zur Inhibierung von thermisch-oxidativen Alterungseffekten der Isolierstoffmischung zugesetzten Antioxidantien nicht an ihren initialen Plätzen innerhalb des Polymervolumens verbleiben, sondern in dreifach extrudierten Polymercompounds durch Diffusionsvorgänge aus dem Basispolymer in die angrenzenden halbleitenden Schichten migrieren. Dieses Verhalten wird auf die größere aktive Oberfläche von in den Leitschichten enthaltenen Rußpartikeln zurückgeführt und kann in derartigen Konstruktionen nicht gänzlich vermieden werden [Andreß1984]. Eine Reduzierung der Diffusionsverluste hinzugefügter Stabilisatoren ließe sich unter Berücksichtigung einer verträglichen Inkorporation in die Polymermatrix durch die Verwendung höhermolekularer Additive erreichen, wobei daraus jedoch Schwierigkeiten hinsichtlich einer homogenen Einbringung des Stabilisationszusatzes während der Compoundherstellung resultieren [Andreß1983].

2 Charakterisierung und Zustandsbewertung von VPE-isolierten Kabeln

Im Rahmen der folgenden Kapitel werden einige zur Charakterisierung und Zustandsbewertung von polymerisolierten Energiekabeln angewandte Verfahren beschrieben. Hierbei sollen sich die Ausführungen auf die prinzipielle Anwendung sowie relevante Charakteristika der Methoden hinsichtlich der Applikation auf das Betriebsmittel VPE-isoliertes Energiekabel beschränken. In diesem Zusammenhang werden zunächst elektrische und dielektrische Verfahren erläutert, wobei eine Unterteilung in zerstörende und zerstörungsfreie Prüfungen erfolgt. Danach werden mit Blick auf die Werkstoffanalyse einige ausgewählte nicht elektrische Untersuchungsmethoden eingeführt, wobei der Schwerpunkt auf spektroskopischen Verfahren liegt.

Diagnoseverfahren zur Zustandserfassung von Isoliersystemen umfassen prinzipiell sowohl Mess- und Prüfaufgaben als auch analytische Methoden zur Quantifizierung der ermittelten Messergebnisse. Dabei ist zur Diagnose allgemein ein empirisch oder theoretisch belegter Zusammenhang zwischen Prüfaussage und Zustandsbewertung notwendig [Kahle1989], um eine Beurteilung des elektrischen Betriebsmittels im Neuzustand hinsichtlich der zu erwartenden Lebensdauer und eine Abschätzung der aktuellen Betriebszuverlässigkeit und der Restnutzungsdauer vornehmen zu können [ETG2004]. Als Diagnostik wird in diesem Kontext die Gesamtheit der Prozesse von der Informationsgenerierung durch Messungen über deren Analyse bis hin zu erforderlichen Maßnahmenentscheidungen bezeichnet [ETG2004].

2.1 Elektrische und dielektrische Verfahren

Elektrische und dielektrische Zustandsprüfungen von VPE-Isolierungen für Hoch- und Höchstspannungsanwendungen im Neuzustand hinsichtlich einer Einschätzung des Langzeitverhaltens können beim Hersteller in Form von Entwicklungsprüfungen an Modellkabeln oder Werkstoffproben und im Rahmen von Typ- und Präqualifikationsprüfungen mit „full-sized“ Kabeln vorgenommen werden. Dabei lassen sich aufgrund der Tatsache, dass an „full-sized“ Kabeln infolge der hohen elektrischen Festigkeit deren Bestimmung oft nur durch eine indirekte Abschätzung in Form einer Besser-als-Aussage möglich ist, wichtige Erkenntnisse zur Langzeitbeständigkeit durch Restfestigkeitsuntersuchungen an Modellkabeln zu Beginn und am Ende definierter beschleunigender Alterungsbeanspruchungen erzielen, wie z. B. durch erhöhte Feldstärken und Temperaturen oder Temperaturzyklen. Aufschluss hinsichtlich weiterer Informationen zur Kabeldimensionierung kann darüber hinaus mit Hilfe von Stoßspannungsfestigkeitsprüfungen im Stufentest erhalten werden, bei denen in der Praxis die Temperatur und die Polarität variiert werden [Peschke1998].

Als Konsequenz derartiger Zustandsuntersuchungen im Neuzustand, die Einbindung im Rahmen von Typ-, Routine- und Langzeitprüfungen gemäß dem Standard IEC 62067 finden, kann eine hohe Qualität aktueller VPE-Technik für Kabelsysteme festgestellt werden [Kirchner2005].

2.1.1 Zerstörende Verfahren

Elektrische Prüfungen zur Zustandsbewertung von Polymerisolierungen mit inhärenter Zerstörung des Prüfobjektes können zum einen an ungealterten Proben durchgeführt werden, um mit Hilfe von Lebensdauermodellen, die teilweise nur unter sehr speziellen Randbedingungen anzuwenden sind, eine Abschätzung der möglichen Betriebsdauer vorzunehmen. Zum anderen kön-

nen zu jedem beliebigen Zeitpunkt der Betriebsdauer einer Kabelstrecke durch destruktive elektrische Untersuchungen an vollständigen Kabeln oder an entnommenen Kabelproben Kenntnisse hinsichtlich einer möglichen restlichen Lebensdauer vergleichbar beanspruchter Kabel gewonnen werden, wobei jedoch, wie bei Untersuchungen an Kabeln im Neuzustand auch, eine Abschätzung der Restlebensdauer insbesondere unter synergistischen Beanspruchungen mit erheblichen Schwierigkeiten verbunden ist. Vor diesem Hintergrund werden im Folgenden im Bereich der Kabeltechnik übliche Verfahren zur Bestimmung der elektrischen Restfestigkeit und der Raumladungsverteilung an Polymerisierungen näher vorgestellt.

2.1.1.1 Restfestigkeitsprüfung

Als wichtigste Bewertungsgröße einer Isolierung ist die elektrische Festigkeit anzusehen. Dessen Ermittlung insbesondere unter Betriebsbedingungen ist im allgemeinen nur schwer möglich, so dass andere Kennwerte zur Bestimmung des Isolationszustandes eines Betriebsmittels herangezogen werden müssen. Eine im Bereich von Kabelanlagen verbreitet genutzte Kenngröße stellt die elektrische Restfestigkeit dar, die oft als ganzzahliges Vielfaches k des Effektivwertes der Betriebsspannung U_0 in Form der Bezeichnung $k \cdot U_0$ verwendet wird. Als Verfahren zur Bestimmung der elektrischen Restfestigkeit betriebsgealterter Mittelspannungskabel mit PE- bzw. VPE-Isolierung hat sich in der Praxis eine Methode der Forschungsgemeinschaft für Hochspannungs- und Hochstromtechnik (FGH) etabliert, deren Anwendung zum Teil in die Normung von fertigungsbegleitenden Prüfungen nach VDE 0276-620 eingeflossen sind. Durch eine nur mäßig erhöhte netzfrequente Prüfwechselfspannung von $3 \cdot U_0$ über eine Dauer von 60 Minuten wird dabei sichergestellt, dass singuläre Fehlstellen, die nicht repräsentativ für den integralen Isolationszustand der untersuchten Kabelprobe sind, mit großer Wahrscheinlichkeit zum Durchschlag des Prüflings führen. Im Anschluss daran wird durch eine stufenförmige Spannungssteigerung bis zum Durchschlag der Probe die charakteristische Kenngröße $k \cdot U_0$ ermittelt, die generell als Qualitätsmerkmal eines Energiekabels angesehen wird [Weck1989].

2.1.1.2 Raumladungsmessung

In Ergänzung der Ausführungen in Kapitel 1.2.1 erfolgt eine Vorstellung existierender Verfahren zur Messung von Raumladungen in polymeren Isolierstoffen. Ein gemeinsames Merkmal der

Tabelle 2.1: Übersicht von Raumladungsmessmethoden [CIGRÉ¹¹2005]

Methode	Anregung	Messsignal
„piezoelectric induced pressure wave propagation (PIPWP)“	akustischer Impuls (ns-Bereich)	elektrisches Signal (ns-Bereich)
„laser induced pressure propagation (LIPP)“	akustischer Impuls (ns-Bereich)	elektrisches Signal (ns-Bereich)
„pulsed electro-acoustic (PEA)“ method	elektrischer Impuls (ns-Bereich)	akustisches Signal (ns-Bereich)
„thermal step method (TSM)“	thermischer Impuls	elektrisches Signal

Methoden, mit Ausnahme der „thermal step method (TSM)“ und modifizierter „pulsed electro-acoustic (PEA)“-Verfahren, die auch Untersuchungen an dickwandigen Proben ermöglichen, ist dabei die vorrangige Anwendbarkeit im Bereich von Kleinproben zu sehen, wobei zur Probenvorbereitung eine Zerstörung vollständiger Kabel erforderlich sein kann. Die Messungen selbst besitzen jedoch nicht zerstörenden Charakter. Grundsätzlich erfolgen Raumladungsmessungen

¹¹ CIGRÉ (International Council on Large Electric Systems)

dadurch, dass zunächst das Ladungsgleichgewicht innerhalb der untersuchten Probe temporär gestört wird und im Anschluss daran die Reaktion des Dielektrikums in Form eines elektrischen oder akustischen Impulses aufgezeichnet wird. Tabelle 2.1 zeigt einen Überblick über aktuelle Messverfahren zur Untersuchung von Raumladungsverteilungen polymerer Dielektrika. Eine temporäre Störung des Ladungsgleichgewichtes einer Polymerprobe kann z. B. durch Beanspruchung mit einem transienten Spannungs-, Druck- oder Temperaturimpuls erfolgen, auf Grund dessen im untersuchten Material eine Kompression oder eine Expansion zur einer minimalen Bewegungsstimulation der vorhandenen Raumladungsverteilung führt. Die Leistungsfähigkeit der angeführten Verfahren wird wesentlich von Randbedingungen wie Charakteristika der akustischen, elektrischen oder thermischen Impulse, der Probenkörperdicke sowie dem verwendeten Elektrodenmaterial beeinflusst und sind daher für vergleichende Untersuchungen unbedingt zu berücksichtigen. Infolgedessen ergibt sich die Notwendigkeit zuverlässiger Signalkalibration, um abgesicherte und reproduzierbare Resultate zu erzielen [CIGRÉ2005].

Die am häufigsten angewandten Messmethoden (TSM, PEA und LIPP) weisen Sensitivitäten von maximal $1 \mu\text{C}/\text{m}^3$ auf [Montanari2005], wobei räumliche Auflösungen im Mikrometerbereich erreichbar sind. Daher können Erkenntnisse auf nanometrischer Ebene mit diesen Techniken nicht direkt gewonnen werden. Es ist jedoch möglich, den Einfluss von Nanostrukturen auf das Gesamtverhalten von Polymeren hinsichtlich deren Ladungsträgertransporteigenschaften zu verdeutlichen. Dazu ist allerdings eine ganzheitliche Betrachtung der Gesamteffekte von in das Dielektrikum eingebrachten Nanostrukturen im Hinblick auf „trapping“- und Transporteigenschaften von Ladungen erforderlich. So hat sich gezeigt, dass nanostrukturierte Kunststoffe dazu tendieren, den Raumladungsaufbau im Vergleich zu Polymeren ohne Nanokompositionen zu erschweren. Eine Erklärung dieses Effektes wird im Zusammenhang mit deutlich geringeren Ladungsträgerverweilzeiten in „traps“ vermutet [Montanari2005].

Eine Charakterisierung fester Isolierstoffe hinsichtlich ihres Ladungsverhaltens wird wesentlich von Defektverteilungen bestimmt, die in der Regel Konzentrationsbereiche von Ladungsträgern darstellen. Aufgrund des augenblicklich noch nicht ausreichenden räumlichen Auflösungsvermögen existierender Raumladungsmessmethoden sind für die Isolationscharakterisierung wichtige Informationen, wie die in geladenen Kunststoffen gespeicherte Gesamtenergie oder durch Anregung aus Gitterstrukturen freigesetzte Energien, aus Untersuchungen der makroskopischen Ladungsverteilung nicht extrahierbar. Eine Abschätzung des Materialverhaltens unter vorgegebenen Beanspruchungen ist somit gegenwärtig nicht realisierbar [Damamme1997]. Auf der Suche nach physikalischen Erklärungen der bisher gemachten Beobachtungen im Bereich von vorliegenden Daten aus Raumladungsmessungen zeigen Modellierungen von „trapping“-Effekten vorhandener Ladungen, dass in Gitterdeformationen beträchtliche mechanische Energien zur Aufnahme von Ladungsträgern gespeichert werden können. „detrapping“-Prozesse scheinen in einer Abgabe der gespeicherten Energien an die Materie zu resultieren, die zu einer wesentlichen Materialbeanspruchung führen kann [Damamme1997].

Die Applikation von Raumladungsmessmethoden auf dickwandige, radialsymmetrische Dielektrika ist durch Modifizierungen der PEA-Technik sowie mit dem TSM-Verfahren umsetzbar. In [Tourelle1998, Platbrood2002] wird über Praxisanwendungen berichtet, wobei mit Hilfe der TSM-Technik an vollständigen, kurzen Energiekabelstücken Erkenntnisse hinsichtlich der Raumladungsverteilung über eine Isolierwandstärke von bis zu 20 mm mit einer Auflösung von $1 \text{ mC}/\text{m}^3$ erzielt wurden. Als wesentlicher Einsatzbereich der Methode wird die Qualitätskontrol-

le von polymeren Isolierstoffen beim Fertigungsprozess sowie die Isolationscharakterisierung fester Dielektrika im Rahmen von Zustandsbewertungsverfahren betrachtet. Werden höhere Anforderung an die Auflösung von Raumladungsmessverfahren gestellt, können z. B. durch Modifikationen der PEA-Methode hinsichtlich von Dämpfungs- und Streuungsproblematiken im Bereich der akustischen Signalausbreitung in komplexen Medien bei radialen Probendicken von mehreren Millimetern Ladungsdichteverteilungen in der Größenordnung von $1 \mu\text{C}/\text{m}^3$ detektiert werden [Fu2000].

2.1.2 Zerörungsfreie Verfahren

In den nachstehenden Abschnitten erfolgt eine kurze Vorstellung ausgewählter Ansätze zur Charakterisierung des Isolationszustandes von VPE-Isolierungen für Energiekabel auf der Basis zerstörungsfreier elektrischer und dielektrischer Verfahren. Dabei wird zunächst auf Methoden der dielektrischen Spektroskopie eingegangen, die sich insbesondere erst in den letzten Jahren zu einem verbreitet untersuchten Diagnosemittel zur Zustandsbewertung verschiedener elektrischer Betriebsmittel entwickelt haben. Anschließend wird über seit vielen Jahren erforschte Teilentladungsmessungen zur Isolationscharakterisierung berichtet, wobei auf deren umfassend erprobter Anwendbarkeit im Rahmen verschiedener Fertigungsprüfungen eingegangen wird und Ausblicke auf kontinuierliche Überwachungssysteme an ausgedehnten Energiekabelsystemen gegeben werden.

2.1.2.1 Dielektrische Spektroskopie

Untersuchungsverfahren zur Zustandsbestimmung von Isoliersystemkonstruktionen in Betriebsmitteln der elektrischen Energietechnik aus dem Bereich der dielektrischen Spektroskopie repräsentieren geeignete Diagnosewerkzeuge, die z. B. im Bereich von Leistungstransformatoren und Energiekabelsystemen für Hochspannungsanwendungen verbreitet Anwendung gefunden haben, da sie neue Möglichkeiten zur „off line“- und „on site“-Bewertung des Isolationszustandes der Betriebseinheiten eröffnen [Zaengl2003b]. Gegenwärtig werden dabei drei Methoden technisch angewandt:

- „return voltage measurement (RVM)“
- „frequency domain spectroscopy (FDS)“
- „polarization and depolarization current (PDC)“.

In der praktischen Anwendung zeigen die verschiedenen Verfahren jedoch in einigen Fällen unterschiedliche Ergebnisse, deren Ursachen sowohl auf die eingesetzte Messtechnik als auch auf die angewandte Modellierung des untersuchten Isoliersystems zurückgeführt werden können [Leibfried2005].

Das RVM-Verfahren erfasst die sich an den Kontaktelektroden eines Isolierstoffes nach einer definierten Formierung mit Gleichspannung und anschließendem Kurzschließen des Dielektrikums aufgrund von im Material noch vorhandener Polarisierungen einstellende so genannte Rückkehrspannung. Diese Diagnosemethode wird bevorzugt bei Isoliersystemen mit nicht zu hohem Isolationswiderstand angewandt, wie z. B. Öl-Papier-Isolierungen in Leistungstransformatoren oder Energiekabeln, wobei vorwiegend Korrelationen zwischen Bewertungsgrößen aus Analysen von Rückkehrspannungsverläufen und dem im Isoliersystem vorhandenen Feuchtegehalt von Interesse sind. Da das Messverfahren durch eine Verbindungstechnik zwischen Messge-

rät und Prüfobjekt charakterisiert werden kann, die auf dem Anschluss von nur einer Klemme basiert, müssen die verwendeten Messeinrichtungen geeignete Eingangskennwerte aufweisen, um deren Einfluss auf die Verläufe der Rückkehrspannungen ausschließen zu können. Im Bereich PE/VPE-isolierter Energiekabel wird dieses Diagnoseverfahren infolge des hohen Isolationswiderstandes im Allgemeinen nur begrenzt eingesetzt [Zaengl2003b, Leibfried2005]. Dort wurde in der Vergangenheit verbreitet eine Diagnosetechnik angewandt, die als „isothermal relaxation current (IRC)“-Analyse bezeichnet wird und auf Depolarisationsstrommessungen im Zeitbereich basiert. Mit Hilfe einer komplexen Auswerterroutine wird mit der Methode eine als Alterungsfaktor oder -beiwert definierte Kenngröße ermittelt, die mit der elektrischen Restfestigkeit korreliert [Beigert1995].

Anmerkungen hinsichtlich der beiden anderen, zuvor aufgeführten Verfahren aus dem Bereich der dielektrischen Spektroskopie sollen an dieser Stelle entfallen, da sie Bestandteil eigener experimenteller Untersuchungen zur Zustandscharakterisierung unterschiedlich laborgealterter VPE-Isolierungen sind und daher in den Kapiteln 3.3.1 und 3.4 eingehend beschrieben werden.

2.1.2.2 Teilentladungsmessung

Teilentladungen (TE) resultieren bei fortdauernder Aktivität in polymeren Isolierstoffen in einer irreversiblen Materialschädigung, die nach Dauerbeanspruchungen mit Feldstärken deutlich unterhalb der elektrischen Kurzzeit- und der thermischen Langzeitfestigkeit in Form eines Erosionsdurchschlags zum elektrischen Versagen des Materials führen. Dabei entsteht insbesondere durch Wechsellastbeanspruchungen eine periodische elektrische Zerstörung und damit fortschreitendes „electrical treeing“. Darüber hinaus ist eine chemische Erosion des Isoliermaterials infolge von durch TE erzeugte Zersetzungsprodukte zu beobachten [Beyer1986]. Bevorzugt treten TE in materialinhärenten Defektstrukturen oder infolge von durch Werkstoffinhomogenitäten verursachten lokalen Feldüberhöhungen auf. Die Entwicklung der Materialdegradation wird ausgehend vom erstmaligen Aufbrechen molekularer Strukturen, dem oft nur mit hochempfindlichen Lichtemissionsmessungen detektierbaren Initialaufbruch, durch kontinuierliches Kanalwachstum charakterisiert. Dabei sind mit dem Initialaufbruch nicht zwangsläufig messbare TE verbunden [König1993]. Das Kanalwachstum wird durch die in den Kanalstrukturen auftretenden Prozesse und die Isolierstoffmorphologie und die -temperatur beeinflusst. Weiterhin üben mechanische Spannungen innerhalb des Dielektrikums sowie der in den TE-Kanälen herrschende Gasdruck Einfluss auf die Kanalausbreitung aus. Im Fall einer polymeren Kabelisolierung ist von einer Zeitdauer von mehreren Minuten bis zu einigen Stunden für die Entwicklung vom Initialaufbruch hin zum vollständigen Durchschlag auszugehen, wobei kurz vor einem Durchschlag die Intensität der TE-Signale, insbesondere die registrierte Ladung, deutlich ansteigt [Beyer1989, Schichler1996].

TE-Messungen an VPE-isolierten Energiekabeln für Hoch- und Höchstspannungsanwendungen werden zum einen als zuverlässige Fehlererkennung im Rahmen von Typ- und Routineprüfungen und zum anderen bei Vor-Ort-Prüfungen von Kabelanlagen eingesetzt, wobei Vor-Ort-Messungen von Teilentladungen sowohl in Form von Inbetriebnahmen als auch im Fokus der Betriebsmittelzustandsbewertung durch Wiederholungsprüfungen realisiert werden [Peschke1998]. Dabei ergeben sich aktuelle Problematiken der TE-Messung Vor-Ort aus z. B. erreichbaren Messempfindlichkeiten, die in Tunnelanlagen bis zu 5 pC und an im Erdreich verlegten Kabelanlagen hingegen nur 100 pC betragen können [Kirchner2005].

Die TE-Messung ist allgemein eine sehr verbreitete Diagnosetechnik, die mehrere Kenngrößen zur quantitativen Auswertung bereitstellt. Dabei handelt es sich in erster Linie um die scheinbare Ladung von TE-Impulsen, die Phasenlage und die Amplituden- und Phasenlageverteilung von TE-Signalen sowie die Spannungsdifferenz zwischen zwei aufeinander folgenden TE. In diesem Zusammenhang sind die Bezeichnungen φ - q - n bzw. Δu - φ - n Muster gebräuchlich. Eine Zustandsbewertung kann durch Vergleich von gemessenen TE-Signalen und deren Muster mit zuvor ermittelten Referenzwerten erfolgen, wobei die Beachtung der jeweils vorliegenden Randbedingungen von erheblicher Bedeutung ist. Dabei sind sowohl Betriebsmittelspezifika als auch Nutzungs- und Installationshistorien sowie TE-Erfassungsbedingungen zu berücksichtigen. Eine Erhöhung der Aussagequalität ist durch statistische Erfassung des TE-Verhaltens möglich und wird in der Praxis z. B. in Datenbankkonzepten umgesetzt [Gulski2002].

Das Auftreten von TE stellt einen komplexen physikalischen Prozess dar, so dass TE-Intensitäten z. B. von Hochspannungskabeln im Betrieb nur in Form eines Monitoring über einen längeren Zeitraum aufgrund ihres stochastischen Charakters zu erfassen sind, um Erkenntnisse hinsichtlich einer Zustandsbewertung des Betriebsmittels zu erlangen. Eine zeitlich periodische TE-Messung verkörpert aber nur einen ersten Schritt, da z. B. eine plötzlich auftretende Änderung eines Isolationszustandes infolge transienter Überspannungen nur durch kontinuierliche TE-Messungen registriert werden kann [Lemke2005]. Jedoch existieren auch Vorbehalte gegenüber Monitoringansätzen im Bereich extrudierter Hoch- und Höchstspannungskabeln aufgrund des erzeugten Datenumfanges und der damit verbundenen Schwierigkeit geeigneter Datenverarbeitung und -interpretation [Pultrum2004].

Existierende Ansätze zur Zustandsbewertung extrudierter Energiekabel auf der Basis von TE-Messungen beschränken sich vornehmlich auf Prüfungen an freigeschalteten Kabelstrecken und weisen somit keinen Monitoringcharakter auf. Dafür existieren zur Vermeidung eines hohen Prüfleistungsbedarfs an verlegten Kabeln unterschiedliche Prüfspannungskonzepte. Zum einen werden vorwiegend an Mittelspannungskabeln sinusförmige Spannungsverläufe mit 0,1 Hz genutzt, die bei verschiedenen Beanspruchungsniveaus angewandt werden. Weiterhin werden auch gedämpft schwingende Prüfspannungen eingesetzt, wobei deren Eignung zur TE-Messung bisher auf den Mittelspannungsbereich begrenzt ist. Jedoch wird die Entwicklung der Akzeptanz des Verfahrens für polymerisierte Hochspannungskabel vorangetrieben [Gulski2004]. Zum anderen ermöglichen auch Kurzeitprüfungen mit Resonanzanlagen im Frequenzbereich zwischen 20 Hz und 300 Hz an Mittel- und Hochspannungskabelanlagen bei erhöhtem Beanspruchungslevel eine Aufdeckung kritischer Defekte [CIGRÉ2002].

Eine kontinuierliche TE-Überwachung von Mittelspannungskabeln wird jedoch aktuell in den Niederlanden in einem Teilbereich des Energieversorgungsnetzes installiert, wobei TE-Signale jeweils gleichzeitig an den beiden zugänglichen Enden einer Kabelstrecke gemessen werden. Dabei ist eine hochexakte zeitliche Synchronisierung der Messsysteme erforderlich, da aufgrund von Dämpfungseffekten und Störsignalen eine wesentliche Signalabschwächung verursacht wird. Durch eine komplexe Signalverarbeitung und spezielle Auswertungsmethoden wird somit eine Schwachstellendetektion bis auf wenige Meter genau möglich sein [Steennis2006].

Zum Abschluss der Ausführungen über TE-Messungen zur Zustandsbewertung an polymerisierten Energiekabeln ist zu erwähnen, dass Kabelsysteme aktueller Fertigungstechnologie, die einen entsprechend der Standards IEC 60840 und 62067 vorgegebenen Prüfumfang erfolgreich

bestanden haben, als ganzheitliche Energieübertragungseinheit nach ihrer Inbetriebnahme im Rahmen der Messempfindlichkeit als TE-frei bezeichnet werden. Ein Monitoringansatz hinsichtlich einer Zustandsbewertung ist auf den Garniturenbereich zu beschränken, da hier vornehmlich ein Potenzial für TE zu beobachten ist. Für eine kontinuierliche TE-Messung an Garnituren werden daher Einheiten benötigt, die energetisch passiv, empfindlich, störunanfällig und dauerhaft robust sind. Es sind Datenfernabfrageeinrichtungen sowie geeignete Datenauswertemethoden, wie z. B. Impulsformanalyse, phasenaufgelöste 3D φ - q - n Muster, Trendanalyse oder Wavelet-basierte Störunterdrückung, für ein Monitoring notwendig [Pommerenke2000, Lewin2005].

2.2 Nicht elektrische Verfahren

Die im Rahmen dieser Arbeit näher vorgestellten nicht elektrischen Verfahren zur Charakterisierung von VPE-Isolierungen sind aufgrund ihres spektroskopischen Formats immer mit einer Probenentnahme aus einem vollständigen Energiekabel verbunden. Meistens unterliegen die entnommenen Testexemplare darüber hinaus einer weiteren verfahrensspezifischen Probenpräparation. Die Auswahl der im Folgenden beschriebenen Untersuchungsmethoden erfolgte vor dem Hintergrund, dass Defekt- bzw. Hohlraumstrukturen kleinster Abmessungen als Initiierungsmuster von Materialdegradationen anzusehen sind, in dessen Folge morphologische Veränderungen zu komplexen Alterungsprozessen führen. Derartige Gefügedomänen können sowohl mit bildgebenden Verfahren als auch durch analytische Korrelation von Messgrößen mit charakteristischen Kennwerten gekennzeichnet werden.

2.2.1 Positronen-Annihilations-Spektroskopie (PAS)

Die Positronen-Annihilations-Spektroskopie (PAS) ist eine experimentelle Methode zur direkten Bestimmung des freien Volumens von z. B. teilkristallinen Polymeren. Dabei werden Positronen¹² als Sonden zur Bestimmung des freien Volumens eingesetzt. Positronen können durch Paarerzeugung mit hochenergetischen γ -Strahlen oder durch die Nutzung der Bremsstrahlung von MeV-Elektronen generiert werden. Die Empfindlichkeit der Methode ist darauf zurückzuführen, dass in Hohlräumen, Versetzungen oder Defekten die Elektronendichte gegenüber der unmittelbaren Umgebung signifikant erniedrigt ist. Ein Positron orientiert sich während der Diffusion durch den Werkstoff anhand der elektrischen Potenziale vorhandener Defekte. Dabei sind Form und Tiefe der vorherrschenden elektrischen Potenziale entscheidend für den Annihilationsprozess. Ist z. B. die Tiefe des Potenzials einer Positronenfalle so groß, dass das Positron nicht durch thermische Energie entweichen kann, so bleibt es bis zu seiner Zerstrahlung in diesem Defekt lokalisiert. Das Positron annihiliert mit Elektronen aus der Umgebung des Defektes. Die bei der Annihilation entstehende Strahlung enthält somit charakteristische Informationen über die Elektronenstruktur des untersuchten Materials [Mogensen1995].

Insbesondere aufgrund der geringen Wechselwirkung der Positronen mit dem Polymer stellt die PAS ein geeignetes Verfahren zur Analyse der Größe von Hohlräumen im Nanometerbereich dar. Durch Verwendung mono- und niederenergetischer Positronen lassen sich dünne Filme und Oberflächenbereiche tiefenaufgelöst analysieren. Eine Besonderheit der Positron-Elektron-Wechselwirkung stellt die Bildung eines Positroniums dar. Darunter ist ein metastabiler wasserstoffähnlicher Zustand zu verstehen, der aus einem Positron und einem Elektron gebildet wird. Die Bildungswahrscheinlichkeit eines Positroniums in dielektrischer Materie hängt wesentlich

¹² Antiteilchen der Elektronen, die mit ihnen bis auf ihre elektrische Ladung in allen Eigenschaften übereinstimmen

von der Menge freier Elektronen im Diffusionsbereich des Positrons ab, die zuvor in der Spur des Positrons gebildet wurden [Mogensen1995].

Hinsichtlich einer Charakterisierung des freien Volumens teilkristalliner Polymere wird mit Hilfe der PAS die Verteilung der Lebensdauern von in die Probe eingebrachten Positronen ermittelt. In der Regel liegen diese im Bereich weniger Nanosekunden. Aufgrund der unterschiedlichen Weise der Positron Annihilation können verschiedene Zeitbereiche beobachtet werden [Mogensen1995, Bigg1996]:

- Das Positron verbleibt während seiner Lebensdauer in einem freien Zustand und zerstrahlt anschließend mit einem Elektron. Die mittlere Lebensdauer liegt im Bereich von 200 ps bis 300 ps.
- Das Positron wird an einem Ort unterdurchschnittlicher Elektronendichte in einer Potenzialmulde eingefangen. Die mittlere Lebensdauer erhöht sich daher auf 300 ps bis 500 ps.
- Das Positron bildet in Isoliermaterialien mit einem Elektron aus seiner Spur im Verhältnis 3:1 so genannte Ortho-Positronium (o-Ps) und Para-Positronium (p-Ps). Das p-Ps zerstrahlt durchschnittlich bereits nach 125 ps, und die mittlere Lebensdauer des o-Ps beträgt abhängig von z. B. der Struktur des freien Volumens des untersuchten Polymers etwa 1 ps bis 10 ns.

Dabei können insbesondere Elektronenakzeptorgruppen in der Materiematrix die Positroniumbildung hemmen. Bei Untersuchungen von Polymeren liegen meistens drei bis vier Zerfallsarten vor, wobei die längste Lebensdauer üblicherweise der Zerfallszeit des o-Ps zugeordnet wird.

Experimentelle Untersuchungen hinsichtlich von Positronlebensdauern in Abhängigkeit von verschiedenen Materialbeanspruchungen zeigen, dass eine quantitative Bestimmung von Änderungen des freien Volumens nur mit größter Sorgfalt möglich ist, da die Veränderungen oftmals nur sehr gering sind. Nichtsdestotrotz sind aus physikalischer Sicht Zuordnungen von o-Ps zu freien Volumina in amorphen Domänen etabliert. Auf dieser Basis konnte z. B. in [Dlubek1998] gezeigt werden, dass das lokale freie Volumen der amorphen Zonen von LDPE mit zunehmender Temperatur infolge von Segmentbewegungen der Hauptkette zunimmt.

2.2.2 Transmissionselektronenmikroskopie (TEM)

Transmissionselektronenmikroskopien (TEM) werden für hochauflösende Untersuchungen der Polymerstruktur im Nano- und Mikrometerbereich eingesetzt. Die Vergrößerungen betragen etwa 10000...100000 : 1 [Sawyer1996]. Typische Anwendungen der TEM liegen im Bereich der Analyse von lamellaren und sphärolithischen Strukturen in kristallisierbaren Polymeren sowie von mehrphasigen Systemen, wie z. B. Blockcopolymeren und gefüllte Polymeren [Phillips1983]. Eine Untersuchung teilkristalliner Polymere mit TEM erfordert eine spezielle Probenpräparation. Dazu sind zunächst Ultradünnschnitte mit einer Schnittdicke von ca. 50 nm bis 150 nm anzufertigen, die auf ein sehr feinmaschiges Kupfernetz aufgetragen werden. Darüber hinaus erfordert die Analyse von amorphen und kristallinen Zonen einen ausreichenden Kontrast zwischen diesen Bereichen. Zur Kontrastierung werden die zu untersuchenden Proben in der Regel in einen Schwermetallampf, wie z. B. RuO₄, eingebracht. RuO₄ reagiert primär mit der amorphen Phase und lagert sich daher bevorzugt dort ein. Im Durchstrahlungsexperiment der TEM werden die Elektronen in Folge der Kontrastierung an den Schwermetallatomen stärker

gestreut, so dass amorphe Bereiche deutlich dunkler erscheinen als kristalline Domänen [Sawyer1996].

Bei TEM-Untersuchungen werden die Proben unter Vakuum mit beschleunigten Elektronen in Wechselwirkung gebracht. Im Bereich materialwissenschaftlicher Untersuchungen werden Beschleunigungsspannungen von 200 kV oder höher benötigt, wobei Abhängigkeiten zwischen der Ordnungszahl der Atome, der angestrebten Auflösung und der Probendicke vorliegen. So muss z. B. eine Probe umso dünner sein, je höher die Ordnungszahl und je niedriger die Beschleunigungsspannung ist. Beim Elektronendurchtritt durch die Probe entstehen elastische und unelastische Streueffekte, die letztlich das Streuvermögen und somit das Kontrastverhalten bestimmen. Mit Hilfe von Objektiven wird der Elektronenstrahl nach dem Probendurchgang erfasst. Entsprechende Linsensysteme erzeugen ein reelles, stark vergrößertes Bild, das prinzipiell dem der Lichtmikroskopie ähnelt. Dabei können je nach verwendeter Objektiv-Aperatur Hell- und Dunkelfeldmodi unterschieden werden. Im Hellfeldmodus wird der direkte Elektronenstrahl zur Bildgebung genutzt, wodurch im Vergleich zum Dunkelfeldmodus, der den gestreuten Elektronenstrahl verwertet, ein wesentlich schwächerer Kontrast erreicht wird. Dunkelfeldaufnahmen weisen jedoch eine deutlich geringere Intensität als Hellfeldbilder auf und werden daher insbesondere zu Untersuchung kristalliner Materialien eingesetzt. Der Elektronenstrahl durchdringt im TEM den Ultradünnschnitt der Probe sowie die Linsensysteme und projiziert anschließend ein Abbild auf einem Leuchtschirm, der zur Emittierung von sichtbarem Licht beim Elektronenaufprall mit einer fluoreszierenden Beschichtung versehen ist. Das Schirmbild wird anschließend von hochempfindlichen CCD¹³-Kameras aufgezeichnet und der weiteren Bildbearbeitung und Archivierung am PC zugeführt [Sawyer1996].

TEM-Analysen zur Untersuchung alterungsbedingter Morphologieveränderungen von VPE-Proben wurden in der Vergangenheit z. B. in [Robertson1995] durchgeführt, wobei eine Isolierstoffbeanspruchung mit 24 kV/mm für eine Dauer von 2340 h realisiert wurde. Dazu wurden Dünnschnitte von aus vollständig aufgebauten Energiekabeln entnommenen VPE-Proben kontrastiert und hinsichtlich ihrer Lamellarstruktur studiert. Es konnte dabei festgestellt werden, dass im Hinblick auf die Dicke des lamellaren Gefüges der untersuchten Proben eine Homogenisierung infolge der Alterungsbeanspruchung auftritt.

¹³ Ein „charge-coupled device (CCD)“ ist ein lichtempfindlicher Halbleiterdetektor, der u. a. in der digitalen Fotografie verwendet wird.

3 Experimentelle Untersuchungen und deren theoretische Grundlagen

Im vorliegenden Kapitel werden zunächst die an VPE-isolierten Kabeln vorgenommene Laboralterung und die dafür verwendeten Anlagen vorgestellt. Anschließend werden die verschiedenen, den Isolationszustand der zuvor unterschiedlich gealterten Kabelproben charakterisierenden Messverfahren beschrieben, die im Rahmen dieser Arbeit angewandt worden sind. Es erfolgen zunächst Angaben hinsichtlich der Bestimmung der elektrischen Restfestigkeit gealterter Kabel. Danach wird über die Messung und Analyse von Depolarisationsströmen im Zeitbereich berichtet, wobei sowohl isotherme als auch thermisch stimulierte Zustände an vollständigen Kabelproben realisiert wurden. Daran schließt sich eine Schilderung dielektrischer Spektroskopien an Kabeln im Frequenzbereich an. Den Abschluss des Kapitels bildet eine Vorstellung physikalischer Analyseverfahren, die weitere Erkenntnisse hinsichtlich struktureller Materialänderungen nach unterschiedlicher Alterungsbeanspruchung liefern. Dabei wurden hier Untersuchungen mit magnetischer Kernresonanz (NMR), FTIR-Spektroskopien sowie Dichtemessungen durchgeführt. Die Beschreibung der aufgeführten Messverfahren geht einher mit der Formulierung theoretischer Grundlagen, die der entsprechenden Fachliteratur entnommen wurden.

3.1 Laboralterung von VPE-isolierten Kabeln

Laboralterungsversuche an Prüflingslängen des zur Verfügung stehenden VPE-isolierten Modellkabels erfolgten im Rahmen dieser Arbeit unter Variation der elektrischen Feldstärke, der

Tabelle 3.1: Bereiche der untersuchten Alterungsparameter und dabei angewandte Feldsteuertechnik

Alterungsparameter	Einheit	Bereich		
		ohne Feldsteuerung	Silikonaufschiebendverschluss	Wasserendverschluss
E_a	kV/mm	0	13,1	max. 52,3
ϑ_a	°C	50...130	20...130	20...110
t_a	h	max. 8760	max. 8760	max. 100

Leitertemperatur und der Beanspruchungsdauer. Zur Feldsteuerung standen eine Vielzahl bereits vorhandener Silikonendverschlüsse vom Typ *FAE 10* der Firma *Siemens* sowie ein eigenentwickeltes Wasserendverschlussystem zur Verfügung.

In Tabelle 3.1 ist eine Zusammenstellung über die untersuchten Bereiche der verschiedenen Alterungsparameter und die dabei eingesetzte Feldsteuertechnik angegeben. Die Auswahl der Alterungsfeldstärken erfolgte vor dem Hintergrund, dass in der Literatur hinsichtlich beschleunigender elektrischer Alterungseffekte polymerer Energiekabelisolierungen ein Schwellwertbereich von ungefähr 8 kV/mm bis 15 kV/mm diskutiert wird, der etwa der Spanne zwischen mittlerer und maximaler Betriebsfeldstärke im Bereich von 400 kV-Anwendungen entspricht [Parpa1997, Peschke1998, Laurent2003]. Weiterhin sollen Untersuchungen mit deutlich höheren Alterungsfeldstärken zur Klärung von Synergieeffekten bei elektrischen Beanspruchungen im zuvor erwähnten Schwellwertbereich sowie zur Beurteilung zeitlicher Effekte dienen.

Maximale Alterungstemperaturen von 130 °C führen mit großer Wahrscheinlichkeit zum Aufschmelzen kristalliner Zonen innerhalb des teilkristallinen VPE. Infolge derartiger Veränderungen der Materialmorphologie sind Beeinflussungen der physikalischen Werkstoffeigenschaften sowie darauf ansprechender Messgrößen zu erwarten, die jedoch aufgrund von hier vorliegenden

Temperaturgradienten innerhalb des Isolierstoffvolumens verschiedene Erscheinungsformen aufweisen können.

Die im Rahmen dieser Arbeit als Variationsparameter festgelegte Temperatur des Prüfobjektes wird in den Versuchen durch Stromwärmeverluste hervorgerufen. Dazu erfolgte mit Hilfe von Ringkernstromwandlern eine induktive Stromeinprägung in den Kabelinnenleiter. Die Schirmdrähte des Kabels führten während der gesamten Versuche aufgrund einseitiger Erdung keinen Strom. Da eine direkte Kontaktmessung der Innenleitertemperatur eines Energiekabels unter Spannungsbeanspruchung nicht möglich ist, wurde in spannungsfreien Vorversuchen, bei denen die verwendete Kabelprobe näherungsweise als in Luft verlegt betrachtet werden kann, der Zusammenhang zwischen Leitertemperatur ϑ_L und einzustellendem Heizstrom I_H experimentell ermittelt. In Anlehnung an die Norm VDE 0278/628 wurden dazu an einer Kabelprobe drei senkrecht zur Kabelachse orientierte Messbohrungen mit einem Durchmesser von 1,5 mm und einer Tiefe von 7,8 mm zur Aufnahme von Thermoelementen erstellt. Die eingebrachten und die Leiteroberfläche kontaktierenden Temperatursensoren wurden mechanisch fixiert und die an den Bohrungen veränderten Wärmeabfuhrverhältnisse durch zusätzliches Anbringen geeigneter Wärmeisolierung nivelliert. Neben den Leitertemperaturen an den drei Messstellen wurde dort auch die jeweilige Manteltemperatur registriert. Die Kalibriermessungen erfolgten durch kontinuierliche Erfassung der Temperaturen an den insgesamt sechs Messpunkten mit Thermoelementen von Typ K. Weiterhin wurde der eingestellte Heizstrom mit einem Zangenamperemeter vom Typ *Hioki 3265 Clamp on AC/DC Hi Tester* der Firma *Hioki* aufgenommen. Die stationäre Endtemperatur bei einem vorgegebenen Heizstrom wurde erreicht, wenn sich die Temperatur innerhalb einer Stunde um nicht mehr als maximal 1 K änderte. Zur Überprüfung korrekt kontaktierter Temperatursensoren wurden mindestens drei Wiederholungsmessungen durchgeführt. Die Ergebnisse der Temperaturkalibrierung des verwendeten VPE-isolierten Modellkabels unter Umgebungsbedingungen sind in Bild 3.1 illustriert.

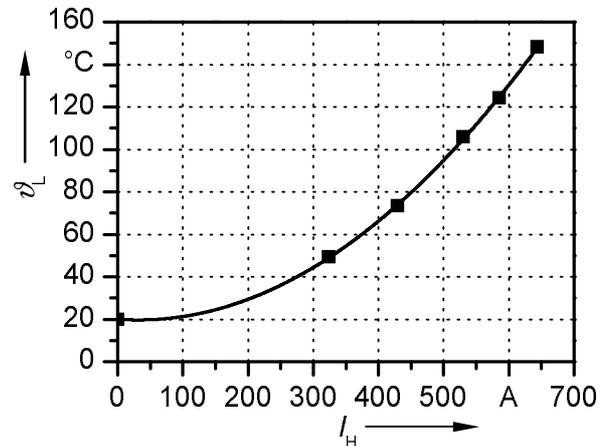


Bild 3.1: Zusammenhang zwischen Leitertemperatur ϑ_L und Heizstrom I_H des verwendeten VPE-isolierten Modellkabels ($\vartheta_U = 20\text{ °C}$)

Für die Bewertung der Temperaturkalibrierung kann davon ausgegangen werden, dass sich die Leitertemperatur des Prüfkabels in Abhängigkeit vom in dem Innenleiter induzierten Strom sowie den herrschenden Umgebungsbedingungen einstellt. Die Alterungsversuchsstände befanden sich in einer ausreichend großen Versuchshalle, in der im Jahresmittel eine Varianz der Raumtemperatur von etwa 8 K festgestellt wurde. Es ist daher kein großer Einfluss der Außentemperaturen auf die Untersuchungsergebnisse zu erwarten. Die Wärmeabgabe des Prüflings an die Umgebung erfolgte durch freie Konvektion. Bei Lage der Kabelprüflinge auf dem Boden wurden die veränderten Wärmeabgabebeziehungen durch einen Stromreduktionsfaktor von 0,95 berücksichtigt [Heinhold1987].

Zur Verifikation der Ergebnisse aus den Temperaturkalibrierungsversuchen wurde eine Vergleichsauswertung mit den Angaben in [Holbøll2000] vorgenommen. Dort findet sich ein Ansatz, bei dem die Manteltemperatur eines Energiekabels gemessen und anschließend auf der Basis eines thermischen Modells eine analytische Berechnung der entsprechenden Leitertemperatur unter Berücksichtigung der herrschenden Umgebungsbedingungen durchgeführt wird. Dazu

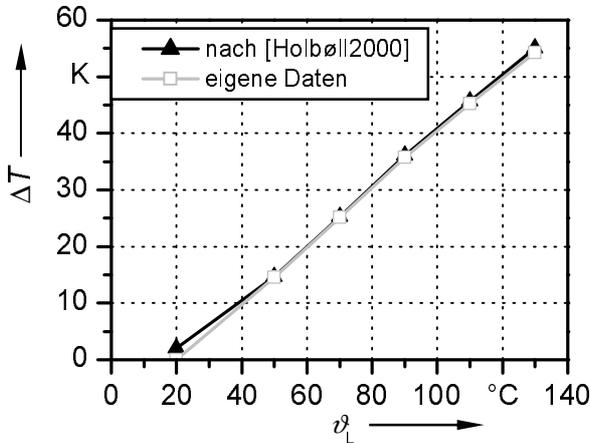
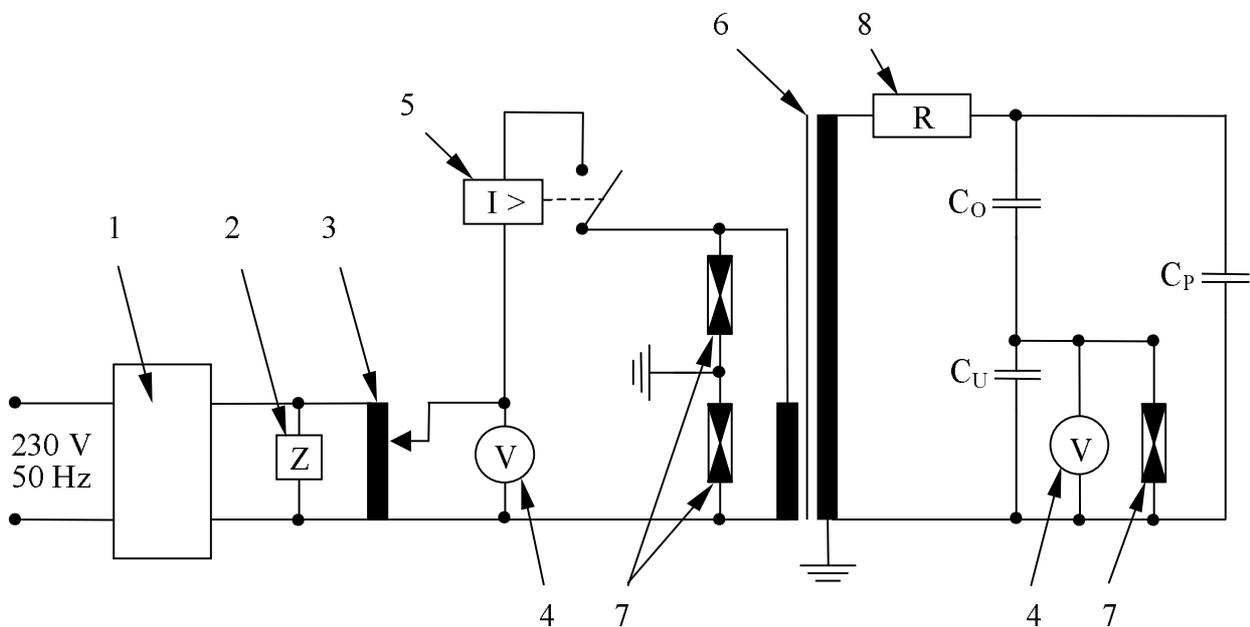


Bild 3.2: Verhältnis zwischen Leitertemperatur ϑ_L und Temperaturgradient ΔT über einer VPE-Isolierung für Energiekabelanwendungen

zeigt Bild 3.2 den sich bei einer vorgegebenen Leitertemperatur über der Isolierung einstellenden Temperaturgradienten unter Berücksichtigung der Geometrie verhältnisse des verwendeten Modellkabels. Im Vergleich dazu weist der experimentell ermittelte Kurvenverlauf eine sehr gute Übereinstimmung auf.

3.1.1 Versuchsanlagen

Zur Durchführung der Laboralterung VPE-isolierter Modellkabel wurden Prüfanlagen verwendet, die eine Beanspruchung mit netzfrequenter Wechselspannung und wahlweiser Kombination mit induktiven Heizeinrichtungen ermöglichen. Weiterhin konnten separate Heizanlagen für rein thermische Beanspruchungsversuche genutzt werden. Dies erfolgte in der Regel mit Kurzschlusstransformatoren. Alle verwendeten Versuchsanlagen waren mit einer Einheit zur Erfassung der Beanspruchungsdauer ausgestattet und registrierten die je-



- | | |
|---------------------------|---|
| 1: Schutzeinrichtung | 5: Sicherungsautomat |
| 2: Betriebsstundenzähler | 6: Hochspannungs-Prüftransformatorkaskade |
| 3: Handstelltransformator | 7: Edeltgassicherungen |
| 4: Voltmeter | 8: Vorwiderstand |

Bild 3.3: Prinzipschaltbild der Wechselspannungsanlagen zur Alterung von VPE-isolierten Modellkabeln

weils aktuelle Beanspruchungsspannung sowie den momentanen induktiven Heizstrom. Der grundsätzliche Aufbau der Alterungsversuchsstände ist in Bild 3.3 dargestellt. Als Hochspannungs-Prüftransformator-kaskaden kamen verschiedene Verschaltungen nach *Fischer* zum Einsatz. Diese wiesen maximale Nenn-Oberspannungen von 100 kV und 200 kV bei Nennleistungen von 5 kVA und 20 kVA auf.

3.1.2 Alterungsprogramm

Zur Veranschaulichung der durchgeführten Alterungsbeanspruchungen an VPE-isolierten Modellkabeln dient in diesem Abschnitt Tabelle 3.2, die darüber hinaus die an den verschiedenen Alterungskollektiven realisierten Untersuchungsverfahren aufzeigt. Dabei stellen die im Nachfolgenden angegebenen Wechselspannungen bzw. -feldstärken Effektivwerte dar. Die Prüfkapazität einer vollständigen Kabelprobe betrug für die Laboralterung ca. 1260 pF. Für die diagnostischen Prüfungen reduzierte sich diese Größe im Wesentlichen aus experimentellen Gründen auf etwa 540 pF. Die physikalischen Analysen wurden demgegenüber an Kleinproben bzw. Dünnschnitten vorgenommen. Weitere Angaben über die spezifischen Probenabmessungen für die

Tabelle 3.2: Übersicht der an unterschiedlich gealterten VPE-isolierten Modellkabeln durchgeführten Untersuchungsverfahren (X: durchgeführt)

RF (elektrische Restfestigkeit) NMR (nuclear magnetic resonance)
 ITD (isotherme Depolarisation) FTIR (Fourier-Transform-Infrarot)
 TSD (thermisch stimulierte Depolarisation) N (Kollektivumfang)
 FDS (dielektrische Spektroskopie im Frequenzbereich)

E_a	Parameter		RF	ITD	TSD	FDS	NMR	FTIR	Dichte
	v_a^0 und t_a	N							
0 kV/mm	50 °C – max. 2000 h	3		X		X		X	X
	50 °C – 5000 h	6	X	X	X	X		X	X
	70 °C – max. 2000 h	3		X		X	X	X	X
	90 °C – max. 5000 h	3		X	X	X	X	X	X
	90 °C – 8760 h	6	X	X	X	X			
	110 °C – max. 2000 h	3		X	X	X	X	X	X
	110 °C – 5000 h	6	X	X	X	X		X	X
	130 °C – max. 2000 h	3		X	X	X		X	X
13,1 kV/mm	20 °C – 5000 h	6	X	X	X	X	X	X	X
	20 °C – 8760 h	6	X	X	X	X			
	50 °C – 5000 h	6	X	X	X	X	X	X	X
	70 °C – 5000 h	6	X	X	X	X	X	X	X
	90 °C – 5000 h	6	X	X	X	X	X	X	X
	90 °C – 8760 h	6	X	X	X	X			
	110 °C – 2000 h	6	X	X	X	X			
	110 °C – 5000 h	6	X	X	X	X	X	X	X
	130 °C – 2000 h	6	X	X	X	X			
> 13,1 kV/mm max. 52,3 kV/mm	20 °C – max. 100 h	8	X	X	X	X	X	X	X
	50 °C – max. 100 h	7	X	X	X	X	X	X	X
	70 °C – max. 100 h	6	X	X	X	X	X	X	X
	90 °C – max. 100 h	5	X	X	X	X	X	X	X
	110 °C – max. 2,5 h	5					X	X	X

einzelnen Untersuchungsmethoden sind den die Verfahren beschreibenden Kapiteln 3.2 bis 3.5 zu entnehmen. Die in der Tabelle als nicht durchgeführt gekennzeichneten Untersuchungen an einzelnen Alterungskollektiven sind in aller Regel auf praktische Ursachen zurückzuführen, wie z. B. Nichteignung von Proben aufgrund vorangegangener Prüfungen. Die im Rahmen dieser Arbeit absolvierte Variationsbreite hinsichtlich der Dimensionen der Beanspruchungsparameter sowie der applizierten Diagnoseverfahren ist als Kompromiss zwischen einer bestmöglichen Orientierung an der Praxisrelevanz, dem zur Verfügung stehenden Zeitraum sowie den nutzbaren Möglichkeiten im Labor zu betrachten.

3.2 Bestimmung der elektrischen Anfangs- und Restfestigkeit

Kenntnisse der elektrischen Anfangsfestigkeit stellen hinsichtlich der Beschreibung von lebensdauerverbrauchenden Beanspruchungen eine wesentliche Basis zur Formulierung des Ausgangszustandes eines Betriebsmittels dar. Im Rahmen dieser Arbeit erfolgte die Bestimmung der elektrischen Anfangsfestigkeit des verwendeten VPE-isolierten Modellkabels in zwei aufeinander aufbauenden Prüfprozeduren. Weiterhin stellt die Ermittlung elektrischer Restfestigkeiten als zerstörendes Prüfverfahren zur Zustandsbeschreibung gealterter Energiekabelanlagen eine verbreitete Korrelationsgröße zu Kennwerten aus anderen diagnostischen Verfahren dar (vgl. Kapitel 2.1.1.1). Im nachfolgenden Unterkapitel werden die einzelnen Prüfabläufe näher beschrieben.

3.2.1 Versuchsaufbau und -durchführung

Die Feldsteuerung im Rahmen der Anfangs- und Restfestigkeitsprüfungen VPE-isolierter Modellkabel erfolgte mit Hilfe eines Wasserendverschlussystems. Dabei wird durch eine refraktiv-resistive Steuerung des elektrischen Feldes am abgesetzten Kabelende der Feldverlauf durch Nutzung der hohen Permittivitätszahl des Wassers in Kombination mit dessen vergleichsweise niedrigem ohmschen Widerstand gezielt beeinflusst. Das Potenzialgefälle am Kabelende wird durch Steuerung der Wassertemperatur, des Wasserwiderstandes sowie der Durchflussgeschwindigkeit des Wassers in einem Umlauf getriebenen geschlossenen Kreislauf vergleichmäßig. Dazu wurden Tauchkühler mit einer Gesamtleistung von 2 kW zur Temperaturregulierung, Mischbettionentauscher zur Demineralisierung und somit zum Steuern des Wasserwiderstandes sowie mehrere manuelle Durchlaufventile eingesetzt. Zusätzlich sorgten Filterpatronen auf der Basis von Kunststofffasern mit einem Abscheidegrad von 12 μm für das Zurückhalten von Schwebstoffen. Im Neuzustand des verwendeten Mischbettharzes konnte mit der Anlage eine Wasserleitfähigkeit von weniger als 0,4 $\mu\text{S}/\text{cm}$ erreicht werden. Der Betrieb des Systems hinsichtlich einer auf die Prüfaufgabe abgestimmten Potenzialsteuerung erforderte einen Kompromiss zwischen optimaler linearer Steuerung durch eine hohe Wasserleitfähigkeit sowie der damit inhärenten Erwärmung des Prozesswassers. Im Rahmen der durchgeführten Versuche ließ sich eine optimierte Feldsteuerung mit Leitfähigkeiten von 1,25 $\mu\text{S}/\text{cm}$ bis 2,5 $\mu\text{S}/\text{cm}$ und Wassertemperaturen von max. 35 °C erzielen, so dass Versuche bis zu einer maximalen Wechselspannung von etwa 240 kV realisiert werden konnten.

Das angewandte Verfahren zur Ermittlung der Anfangsfestigkeit des verwendeten VPE-isolierten Modellkabels besteht aus zwei separaten Prüfprozeduren. Zunächst erfolgte die Bestimmung der intrinsischen elektrischen Festigkeit bei Raumtemperatur in Form eines Ramptests unter Beachtung der Empfehlungen aus VDE 0303/21. Die Spannung wurde dabei von Null beginnend mit einer konstanten Steigerungsgeschwindigkeit von 10 kV/s bis zum Durchschlag erhöht. Das Probenkollektiv für diesen Versuch umfasste neun Proben. Mit Hilfe des in Kapi-

tel 3.2.2 näher beschriebenen Auswerteverfahrens wurde aus dieser Datenbasis ein Referenzwert ermittelt, der für das anschließende Prüfverfahren als Grundlage verwendet wurde. Dies erfolgte dahingehend, dass ausgehend von einem Startwert, der zu 30 % des zuvor bestimmten Referenzwertes angenommen wurde, eine Steigerung der anliegenden Spannung um jeweils 10 kV in sukzessiven Stufen bis zum Durchschlag der Probe realisiert wurde. Die Stufendauer betrug dabei jeweils 5 min. Als relevanter Stehspannungswert zur weiteren Datenauswertung wurde immer die letzte Spannungsstufe verwendet, der der Prüfling über der volle Stufenzeit ohne Durchschlag standhielt. Ein Stufentest zur Bestimmung der Anfangsfestigkeit ist sinnvoll, da aufgrund der unterschiedlichen Art der Spannungsbeanspruchung die Werte im Ramptest und im Stufentest verschieden sind und ein sinnvoller Start des Stufentests mit einem aus dem Ramptest ermittelten Wert beginnen sollte. Die Stufentestversuchsreihe wurde in Abhängigkeit von der Leitertemperatur durchgeführt, die dabei Werte von 20 °C, 50 °C, 70 °C, 90 °C, 110 °C und 130 °C stationär annahm. Zur statistischen Absicherung der Ergebnisse wurde für jede Temperaturstufe ein Kollektiv von mindestens sieben Proben geprüft und entsprechend der Erläuterungen in Kapitel 3.2.2 ausgewertet. Die Versuche bei höheren Temperaturen erforderten zur Sicherstellung einer konstanten Leitertemperatur des Prüflings entsprechende Vorlaufzeiten, die im Bereich zwischen 2,5 h und etwa 4,5 h lagen. Zur Verdeutlichung des Versuchsaufbaus dient Bild 3.4.

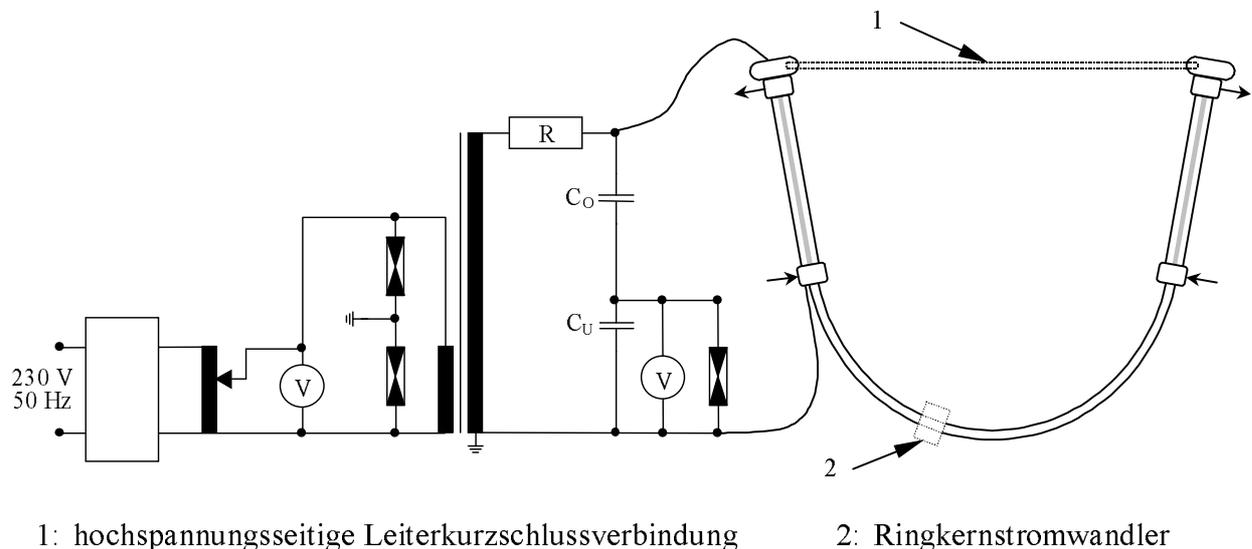


Bild 3.4: Prinzipdarstellung des Versuchsaufbaus zur Bestimmung der elektrischen Durchschlagfestigkeit von VPE-isolierten Modellkabeln unter Verwendung eines Wasserendverschlussystems

Zum Abschluss der Verfahrensbeschreibungen zur Bestimmung der elektrischen Anfangsfestigkeit VPE-isolierter Modellkabel sei auf die dafür notwendige Probenkonditionierung eingegangen. Erkenntnisse z. B. aus [Kober1994, Schiller1996] zeigen deutlich die Unverzichtbarkeit einer thermischen Vorbehandlung zur Entfernung von Vernetzerspaltprodukten, die beim Verbleib im Isolierstoffvolumen eine unzulässige Erhöhung der Festigkeitswerte verursachen. Daher wurde vor den Prüfungen der elektrischen Anfangsfestigkeit in Anlehnung an VDE 0276/605-A1 eine thermische Vorbehandlung der Kabelproben mit 90 °C für die Dauer von sieben Tagen durchgeführt.

Im Anschluss an verschiedene elektrische und thermische sowie kombinierte Alterungsbeanspruchungen wurde die elektrische Restfestigkeit der Kabelkollektive bestimmt. Dies erfolgte in Anlehnung an den Vorschlag von [Weck1989], da sich diese Form des Stufentests (vgl. Kapi-

tel 2.1.1.1) zur Abschätzung der Restfestigkeit gealterter Energiekabel mit Polymerisolierung als sinnvoll erwiesen hat. Der Stufentest wurde bei einem Spannungspegel von 36 kV und einer Stufendauer von 60 min begonnen und dann unmittelbar mit einer Stufenänderung von 6 kV für jeweils 5 min bis zum Durchschlag weitergeführt. Auch in diesem Prüfverfahren wurde der Stehspannungswert als relevante Kenngröße verwendet. In der Regel umfasste der Prüfumfang fünf Proben je Alterungsbeanspruchung. Der zeitliche Verlauf der Prüfprozedur ist in Bild 3.5 dargestellt.

3.2.2 Auswertung und Ergebnisdarstellung

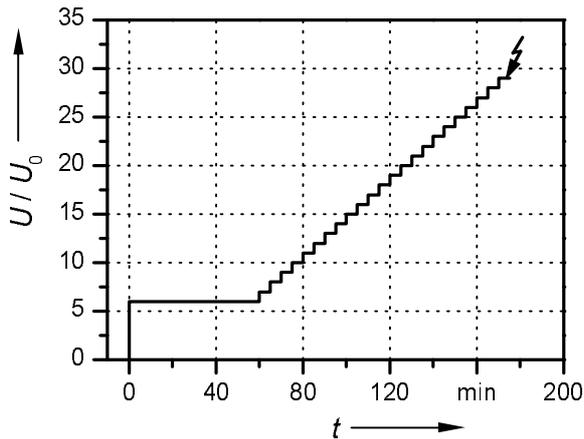


Bild 3.5: Angewandter Stufentest zur Bestimmung der elektrischen Restfestigkeit von Modellkabeln

Die Auswertung von Prüfergebnissen aus Untersuchungen hinsichtlich der elektrischen Festigkeit fester Isolierstoffe erfordert aufgrund von Streuungen durch zufällig verteilte Materialinhomogenitäten ein statistisches Verfahren. Eine in der Hochspannungstechnik weit verbreitete Methode zur statistischen Auswertung von Zerstörungsprüfungen ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung nach Weibull. Dieses Verfahren ist der Gruppe der Extremwertverteilungen zuzuordnen und eignet sich daher zur Evaluation von schwachstellendominierten Durchschlagrealisierungen [Dokopoulos1968, Fischer1974]. Im Rahmen der durchgeführten Versuche wurden die empirischen Messergebnisse durch die zweiparametrische Form der

Weibull-Verteilungsfunktion approximiert und die zugehörigen Parameter geschätzt. Die zweiparametrische Weibull-Verteilungsfunktion lautet [Weibull1951, Fischer1974]:

$$F(x) = 1 - \exp\left(-\left(x/x_0\right)^a\right) \quad (3.1)$$

mit x : Messvariable
 x_0 : Weibull-Nennwert
 a : Streuparameter.

Die Parameterschätzung erfolgt dabei nach der Maximum-Likelihood-Methode. Das Schätzverfahren geht von einer konkreten Stichprobe (x_1, \dots, x_n) des Umfanges n aus einer nach $F(x)$ verteilten Grundgesamtheit aus. Enthält eine Verteilungsfunktion $F(x)$ z. B. die Parameter a und b , so stellt die Likelihood-Funktion $L(x_1, \dots, x_n, a, b)$ ein Maß für die Wahrscheinlichkeit dar, dass die vorgegebene Stichprobe tatsächlich gemessen wird. Prinzipiell wird durch dieses Verfahren die wahrscheinlichste Kombination der Parameter a und b bestimmt, d. h. für die die Funktion L ihr Maximum annimmt. Darüber hinaus können mit dem Maximum-Likelihood-Verfahren auch Vertrauens- bzw. Konfidenzbereiche der gesamten Verteilungsfunktion ermittelt werden. Dabei werden alle Parameterkombinationen erfasst, für die der Wert der Likelihood-Funktion einen bestimmten Anteil des Maximums nicht unterschreitet. Dieser Anteil hängt von der Anzahl der zu schätzenden Parameter ab und kann mittels einer weiteren Verteilungsfunktion näherungsweise

se berechnet werden. Der Wert der Likelihood-Funktion hängt außerdem stark vom Stichprobenumfang ab [Storm1986].

Die auf diese Weise ermittelten Wertepaare $\{x_i, F(x_i)\}$ können anschließend in einem speziellen Koordinatensystem dargestellt werden. Dabei handelt es sich um ein so genanntes Wahrscheinlichkeitsnetz, auf dessen Ordinate $\ln(-\ln(1-F_i))$ und auf dessen Abszisse $\ln(x_i)$ aufgetragen ist. Die in diesem Koordinatensystem dargestellten Messwerte werden mit einer Ausgleichsgeraden angenähert, die durch lineare Regression berechnet wird [Dokopoulos1968]. Der aus diesem Auswerteverfahren hervorgehende Weibull-Nennwert entspricht einer kumulativen Ausfallwahrscheinlichkeit von 63,2 %. Der Streuparameter a wird in der Literatur verbreitet als „slope“ bezeichnet.

Anhand von in der Literatur bekannten Durchschlagtheorien fester Isolierstoffe wird im Folgenden ein kurzer Überblick der für verlustarme Dielektrika relevanten Vorgänge angegeben. Bei festen Isoliermaterialien ist die Durchschlagfestigkeit keine Materialkonstante, sondern von mehreren Einflussgrößen abhängig, wie z. B.

vom strukturellen Aufbau des Werkstoffes, der Form des elektrischen Feldes, der Art und Dauer der Spannungsbeanspruchung, der Temperatur und dem Volumen. Bei Verwendung der Beanspruchungsdauer als Untersuchungsparameter können nach Bild 3.6 zwei ineinander übergehende Sektionen unterschieden werden. Im Bereich sehr kurzer Zeiten führen vorwiegend elektronische Prozesse in zum elektrischen Durchschlag („intrinsic breakdown“). Für diesen Durchschlagmechanismus existiert jedoch aufgrund der Vielfalt verschiedener Materialstrukturen fester Dielektrika keine allgemein gültige Theorie. Im Fall von teilkristallinen Polymeren ist nach den Vorstellungen von Artbauer, z. B. in [Artbauer1970, Artbauer1996], im Wesentlichen von einem durch freie Volumina in amorphen Bereichen initiierten Prozessmechanismus auszugehen. Durch Energieaufnahme von Elektronen im elektrischen Feld innerhalb dieser Zonen wird bei Überwindung relevanter Energiebarrieren von Ladungsträgern ein Stromfluss ermöglicht. Aufgrund der damit verbundenen Wärmeentwicklung stellt sich eine überproportionale Ladungsträgeraktivierung ein, die für weitere Stromflussaktivität sorgt. Innerhalb kurzer Zeit setzt ein lokaler Wärmedurchschlag entlang des Strompfades ein, der zu ausgeprägten Feldüberhöhungen führt und in einer Ausbreitung als Entladungskanal zwischen den Elektroden im Durchschlag endet. Im Vergleich zum elektrischen Durchschlag deutlich längere Beanspruchungszeiten mit geringeren elektrischen Feldstärken führen zum so genannten Erosionsdurchschlag. Dazu wird in [Jonscher1984] ein Modell beschrieben, das infolge von Aneinanderreihungen statistisch im Isolierstoff verteilter Defekte in Feldrichtung mit hoher Wahrscheinlichkeit die Ausbildung einer Kanalstruktur initiiert, die eine Entwicklung großer Stromdichten und somit eine thermische Materialzerstörung einleitet. Zur Kumulation der Defektstrukturen durch beschleunigte Ladungsträger ist in einer Konditionierungsphase eine gewisse elektrische Feldstärke notwendig, die auch als Schwellfeldstärke bezeichnet wird. Die La-

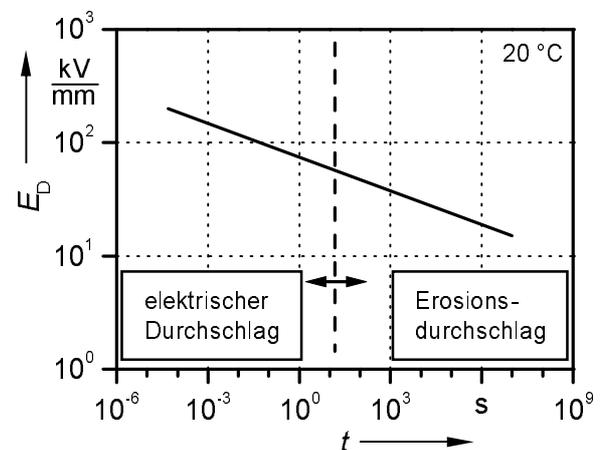


Bild 3.6: Durchschlagfeldstärke E_D in Abhängigkeit von der Beanspruchungsdauer t für PE [Beyer1986]

dungsträgerbereitstellung kann dabei in Form von Elektroneninjektion oder innerer Elektronenaktivierung erfolgen. Hinsichtlich des zeitlichen Ablaufs der Konditionierungsphase spielen die Materialstruktur und die momentane Feldverteilung eine große Rolle. Insbesondere schwache Energien aufweisende *Van-der-Waals*-Bindungen werden bevorzugt als Ausgangspunkte neuer Defektbildungen betrachtet. Weiterhin treten bei moderaten elektrischen Feldstärkebeanspruchungen in defekthaltigen festen Isolierstoffen nach mehr oder weniger langer Beanspruchungsdauer Teilentladungen auf, in deren Folge „electrical treeing“ zu einer Beschädigung des Isoliermaterials bzw. zum Durchschlag führt [Beyer1986].

3.3 Dielektrische Spektroskopie im Zeitbereich

Zur Untersuchung von Relaxationsvorgängen in festen Dielektrika sowie zur Zustandsbewertung von festen und flüssigen Isoliersystemen der elektrischen Energieübertragung haben die Verfahren der dielektrischen Spektroskopie verbreitet Anwendung gefunden. Dabei ist der Fokus der Untersuchungen aus materialwissenschaftlicher Sicht auf die Analyse der molekularen Struktur und deren Dynamik in Form der breitbandigen dielektrischen Spektroskopie (BDS) gerichtet, wobei innerhalb eines Frequenzbereiches von etwa 10^{-6} Hz bis 10^{12} Hz die Messung dipolarer Relaxationsvorgänge infolge von Reorientierungsprozessen polarer Moleküle sowie die Bestimmung der elektrischen Leitfähigkeit erfolgen kann. Als Relaxation wird dabei eine zeitlich verspätete Reaktion des untersuchten Werkstoffes in Form der Polarisierung auf seine Anregung durch ein elektrisches Feld bezeichnet. Der Zeitunterschied zwischen dem Anlegen des Feldes und der Polarisierung hat darüber hinaus einen irreversiblen Energieverlust zur Folge. Informationen hinsichtlich des molekularen Aufbaus des untersuchten Materials sind allerdings aufgrund des geringen energetischen Anregungsniveaus dieses Frequenzbereiches im Vergleich z. B. mit der Infrarot-Spektroskopie nicht zugänglich. Aufgrund der großen Frequenzbandbreite und der damit verbundenen messtechnischen und apparativen Problemstellungen ist die vollständige BDS erst seit verhältnismäßig kurzer Zeit durchführbar, wobei grundsätzlich zwischen Untersuchungen im Zeit- und Frequenzbereich unterschieden wird [Kremer2003, Zaengl2003a].

In diesem Unterkapitel erfolgt daher zunächst eine Beschreibung der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen im Zeitbereich, wobei isotherme und thermisch stimulierte Verfahren angewandt wurden. Über dielektrische Spektroskopien im Frequenzbereich wird anschließend in Kapitel 3.4 berichtet.

3.3.1 Isotherme Depolarisation (ITD)

Im Bereich der dielektrischen Diagnostik von Betriebsmitteln der elektrischen Energieübertragung im Zeitbereich erfolgt prinzipiell eine Bewertung der Wechselwirkungsphänomene zwischen elektromagnetischem Feld und untersuchtem Dielektrikum. Dazu kann z. B. eine messtechnische Erfassung eines spezifischen Antwortsignals stattfinden, das sich aufgrund der Reaktion eines Isolierstoffes auf eine sprunghafte Anregung ausbildet. Dabei kann es sich beispielsweise um die Messung von Depolarisationsströmen an zuvor durch ein elektrisches Gleichfeld polarisierten Dielektrika handeln. Infolge der Anregung werden alle unter den herrschenden Randbedingungen relevanten Polarisationsmechanismen innerhalb des untersuchten Dielektrikums initiiert [Porzel1996]. Ferner sind insbesondere bei verlustarmen VPE-Materialien vor allem Effekte durch Grenzflächenpolarisationen innerhalb des Isolierstoffvolumens an vorhandenen Strukturinhomogenitäten zwischen Bereichen verschiedener elektrischer und dielektrischer Eigenschaften sowie in wesentlich geringerem Umfang dipolare Polarisierungen

[Zaengl2003a] von Bedeutung. Darüber hinaus sind auch mikroskopische Grenzflächenpolarisationen, die bei festen Isolierstoffen geringer Leitfähigkeit Mechanismen bezeichnen, die das Verweilen und den Transport von Ladungsträgern in energetisch lokalisierten Zuständen beschreiben, zu berücksichtigen [Wintle1983].

Weiterhin können isotherme Depolarisationsströme auch in dem Fall Informationen über Polarisationsvorgänge in Dielektrika liefern, wenn korrespondierende Polarisationsströme durch Leitungsströme während der Formierphase maskiert werden [Adamec1978]. Es ist dabei jedoch zu berücksichtigen, dass insbesondere bei Isolierstoffen mit sehr geringer Leitfähigkeit, wie z. B. VPE, infolge der dielektrischen Verluste und des Innenwiderstandes der zur Polarisation verwendeten Gleichspannungsquelle Polarisationseffekte nicht in unendlich kurzer Zeit ablaufen können, so dass Relaxationen, die allgemein eine die zeitlich verzögerte Gleichgewichtseinstellung eines Systems nach einer Zustandsänderung beschreiben, zu erwarten sind.

Die zeitliche Abhängigkeit von Depolarisationsströmen in festen polymeren Isolierstoffen ist auf unterschiedliche Zeitdependenzen durch verschieden ablaufende Relaxationsvorgänge an inneren Strukturinhomogenitäten zurückzuführen, wie sie bei VPE durch Grenzflächen zwischen amorphen und kristallinen Zonen gegeben sind [Hersping1970]. In [Kliem1983] wurde bei Depolarisationsstrommessungen an Aluminiumoxidstrukturen mit variierenden Ladezeiten festgestellt, dass bei vorgegebener endlicher Formierdauer nur die Polarisationsprozesse angeregt werden, deren Relaxationszeiten maximal der Ladedauer entsprechen. Isotherme Depolarisationsströme erfassen daher nur die Mechanismen, die zuvor durch den Formiervorgang angeregt wurden. Folglich liegt eine Distribution verschiedener Relaxationszeiten vor, aufgrund dessen dem untersuchten Material eine Art Gedächtnis zugeordnet werden kann. Die Existenz von Relaxationszeitverteilungen wird in [Fröhlich1958] auf eine Verteilung von Anregungsenergien der Relaxationsprozesse zurückgeführt.

Somit ist für heterogene und nicht isotrope Polymerwerkstoffe aufgrund ihrer komplexen Materialstruktur davon auszugehen, dass dielektrische Relaxationen in Form von sich verbreitet sogar überlappenden Relaxationsmechanismen mit verteilten charakteristischen Relaxationszeiten zu formulieren sind. Ansätze, die von einzelnen separaten Relaxationserscheinungen ausgehen, geben die tatsächlichen Verhältnisse oftmals nur unzureichend wieder. Hinsichtlich einer analytischen Beschreibung isothermer Depolarisationsströme, die von verteilten Relaxationsmechanismen verursacht werden, existieren in der Literatur eine Vielzahl von verschiedenen Modellvorstellungen. In [Hill1985] wird eine Unterscheidung ausgewählter Ansätze vor dem Hintergrund von Kopplungs- und Wechselwirkungseffekten zwischen einzelnen Relaxationen angegeben. In dem Fall ungekoppelter Relaxationseffekte liegt eine Beschränkung von Dipolwechselwirkungen mit der unmittelbaren lokalen Umgebung vor. Die Gesamtheit der Relaxationen verläuft somit weitestgehend parallel und kann für identische Dipole mit dem Ansatz nach Debye $\Phi(t) = \exp(-t/\tau)$ beschrieben werden. Liegen andererseits Kopplungseffekte mit Zonen außerhalb der lokalen Dipolumgebung vor, so verlaufen auftretende Relaxationen sequentiell, wobei langsame Vorgänge in die Bereiche von bereits relaxierten schnelleren Abläufen verschoben werden können. In diesem eher hierarchischen Ansatz wird die Dynamik der Relaxation selbst durch molekulare Wechselwirkungen im Dielektrikum bestimmt. Inhomogenitäten der molekularen Umgebung bewirken dabei, dass sich ein Relaxationsprozess oftmals nicht mehr durch eine einzelne Relaxationszeit beschreiben lässt. Vielmehr muss eine Relaxationszeitverteilung zu Grunde gelegt werden, die als eine Summe einzelner Debye-Funktionen aufgefasst wer-

den kann. Betrachtet man den vollständigen Prozess im Zeitbereich, so wird verbreitet die *Kohlrausch-Williams-Watts-Funktion* $\Phi(t) = \exp(-(t/\tau)^\beta)$ zur empirischen Beschreibung herangezogen. Insbesondere für Zeiten $t \ll \tau$ nähert sich diese Funktion dem *Curie- von Schweidler-Ausdruck* $\Phi(t) = \Phi_0 \cdot t^{-n}$ asymptotisch an, der schon sehr lange zur Approximation von Depolarisationsstromverläufen verwendet wird [Wagner1913]. Jedoch liegt bei der *Curie- von Schweidler-Formulierung* ein rein empirischer Näherungsansatz vor, der insbesondere für $t = 0$ zu Interpretationsdiskrepanzen führt.

Neben den zuvor genannten Ansätzen zur Beschreibung isothermer Depolarisationsströme findet sich in der Literatur, z. B. in [Jonscher1990], ein weiterer, gänzlich anderer Grundgedanke zur Formulierung des Antwortverhaltens eines Dielektrikums auf eine sprungförmige Gleichfeldanregung. Dabei wird auf der Basis empirisch ermittelter fraktionierter Potenzgesetze nach einer Fourier-Transformation eine formale analytische Unabhängigkeit hinsichtlich der Frequenz erreicht, was im Gegensatz zu einer äquivalenten Behandlung der zuvor genannten Ansätze steht. Die unter der Bezeichnung „universal dielectric response“ aufgeführten Formulierungen $\Phi(t) \propto t^{-n}$ für $t \ll 1/\omega_p$ und $\Phi(t) \propto t^{-m-1}$ für $t \gg 1/\omega_p$ mit $0 < n, m < 1$ werden in der Praxis verbreitet zur modellneutralen Auswertung dielektrischer Relaxationsdaten verwendet, obgleich eine universelle Gültigkeit umstritten und deren Ursprung weitgehend ungeklärt ist. In den angegebenen Ausdrücken stellt ω_p die Frequenz dar, bei der die maximalen Verluste eines typischen Relaxationsprozesses auftreten. Der Vorteil dieses Ansatzes gegenüber den zuvor erwähnten Formulierungen wird darin gesehen, dass das dielektrische Verhalten sowohl von dipolaren Dielektrika, die oftmals ein breites Verlustmaximum aufweisen, als auch von verlustarmen unpolaren Isolierstoffen, die häufig durch „low frequency dispersion (LFD)“-Verhalten charakterisiert werden, sehr gut beschrieben werden kann.

3.3.1.1 Versuchsaufbau und -durchführung

Zur Messung von isothermen Depolarisationsströmen unterschiedlich laborgealterter Modellkabelproben mit dreifach extrudierter VPE-Isolierung unter Umgebungsbedingungen wurde der in Bild 3.7 skizzierte Versuchsaufbau verwendet. Die wesentlichen Elemente stellen dabei ein Gleichspannungsnetzgerät

der Firma *Heinzinger*, das eine maximale positive Ausgangsspannung von 3 kV mit hoher Stabilität und geringer Restwelligkeit (0,01 %) erzeugt sowie eine aus mehreren Reed-Relais mit einer maximalen Schaltspannung von 10 kV, Dämpfungswiderständen R_K , R_L und R_M für die Schaltzustände Ladung, Kurzschluss und Messung einschließlich Schaltungselektronik aufgebaute Hochspannungsschalteneinheit und eine Elektrometerversätkerschaltung mit nachfolgender analoger Signalfilterung und 12 bit

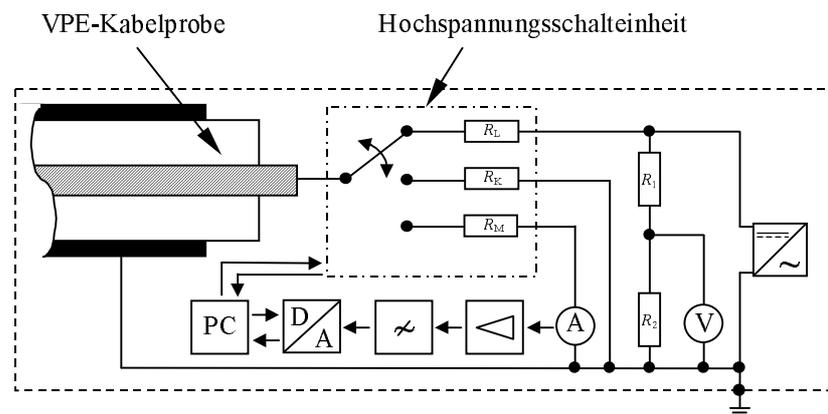


Bild 3.7: Versuchsaufbau zur Messung von isothermen Depolarisationsströmen unterschiedlich laborgealterter VPE-isolierter Modellkabelproben

Wandlung dar. Der Messablauf erfolgte vollautomatisch, so dass hinsichtlich der Schalt-

zeitpunkte vergleichbare Messzyklen realisiert werden konnten. Zur Messautomatisierung wurde auf einem Arbeitsplatzrechner mit Hilfe der objektorientierten Programmierumgebung „TestPoint“ der Firma *Capital Equipment* ein im Rahmen dieser Arbeit entwickeltes Anwenderprogramm implementiert, das die Steuerung der Hochspannungsschalteneinheit sowie die digitale Signalerfassung und -verarbeitung ermöglicht. Der Anwender kann dabei interaktiv eingreifen oder einen automatischen Betriebsmodus wählen.

Hinsichtlich der Qualität der Elektrometerversärkerschaltung und den mit der Messung sehr kleiner Ströme in pA-Bereich verbundenen Schaltungs- und Aufbauproblematiken wurden Empfehlungen in Bezug auf Ausgleichströme, Oberflächenleckströme, Schirmung, Anschlusstechnik und triboelektrische Effekte z. B. aus [Keithley1998, TietzeSchenk2002] berücksichtigt. Im Zusammenhang mit den eingesetzten Elektronikbauteilen und der verwendeten A/D-Messkarte konnte eine Messauflösung von etwa 1,2 pA erreicht werden. Der gesamte Versuchsaufbau wurde stationär in einer geschirmten Messkabine mit einem Störpegel im Bereich zwischen 2 pA und 4 pA installiert, wobei jeweils nur der Probenwechsel einschließlich Herstellung der Messverbindungen manuell ausgeführt werden musste.

Zur Berücksichtigung der inhärenten Signalanteile wurde vor jeder Messung mit vollständigem Aufbau der spezifische „offset“ aufgenommen und später im Rahmen der Signalverarbeitung berücksichtigt. Zur Abschwächung von in das Messsignal einkoppelnden Störfrequenzbereichen erfolgte ein Messvorgang mehrkanalig mit verschiedenen passiven und aktiven Tiefpassfiltereinheiten. Dabei konnten wahlweise passive Tiefpassfilter oder aktive Besselfilter 2. Ordnung mit Grenzfrequenzen von 22 Hz eingesetzt werden, die als Kompromiss bezüglich des Filtergrades und der Signaldämpfung festgelegt wurden. Neben der Ausblendung unerwünschter Störsignale sollte die Elektrometerversärkerschaltung auch über der Messdauer ein von der Temperaturdrift der verwendeten Elektroniklemente unbeeinflusstes Ausgangssignal liefern. Den Darstellungen in Bild 3.8 ist dazu das Verhalten der Messschaltung sowohl für die separate Verstärkerschaltung als auch für den gesamten, im Vergleich dazu räumlich ausgedehnten Messaufbau zu entnehmen. Es ist im oberen Diagramm erkennbar, dass bei einer entsprechenden Achsenskalierung bis hin zur Auflösung einzelner Quantisierungsstufen mit Driftkompensation ein verhältnismäßig konstantes digitales Ausgangssignal über eine Messdauer von 30 min registrierbar ist. Im Fall einer Leerlaufmessung des gesamten Versuchsaufbaus zeigt die untere Graphik ebenfalls Signal-

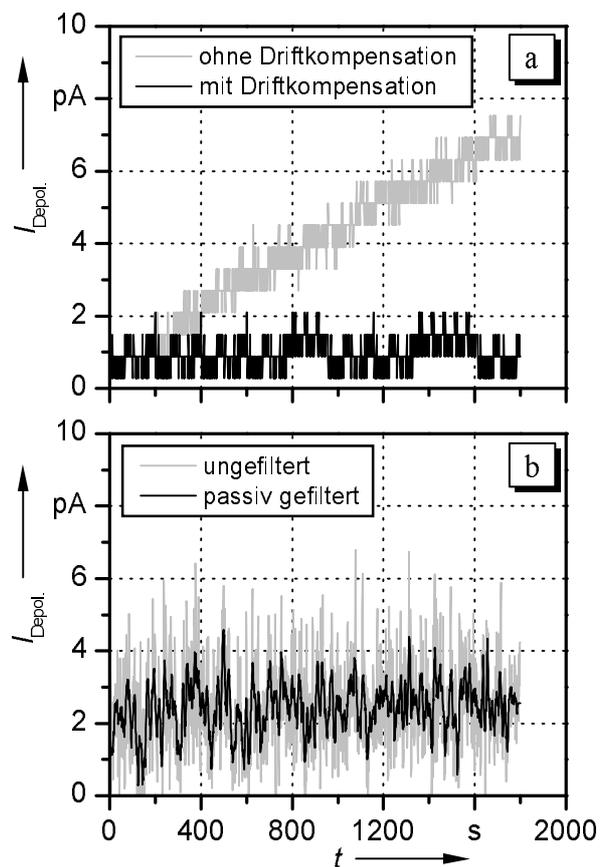


Bild 3.8: Signalverhalten der Messschaltung ohne Belastung
a) separate Verstärkerschaltung
b) kompletter Messaufbau

verhalten. Im Fall einer Leerlaufmessung des gesamten Versuchsaufbaus zeigt die untere Graphik ebenfalls Signal-

konstanz während einer Aufzeichnung über 30 min, wobei unter Verwendung eines passiven Tiefpassfilters das Störsignal nicht wesentlich größer als 4 pA erscheint.

Die in Bild 3.9 dargestellten Kurvenverläufe wurden nach einer 15 minütigen Formierung eines 100 pF Referenzkondensators mit einer Ladespannung von 3 kV und einer anschließenden Kurzschlussdauer von 5 s über eine Zeitspanne von 15 min aufgezeichnet. Zwischen zwei aufeinander

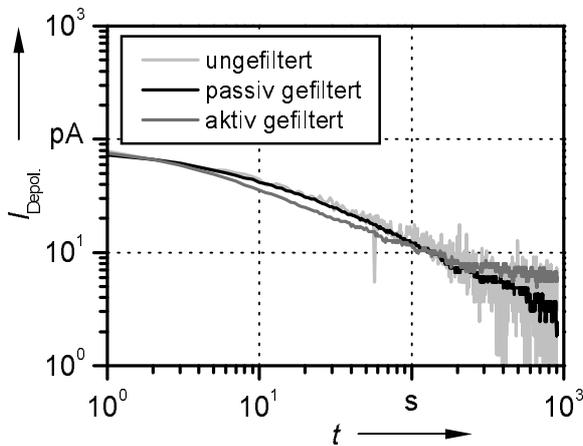


Bild 3.9: Zeitlicher Verlauf isothermer Depolarisationsströme $I_{\text{Depol.}}$ eines Referenzkondensators mit gasförmigem Dielektrikum in Abhängigkeit von der Zeit t für verschiedene Arten der Signalfilterung

folgenden Messungen wurde der Referenzkondensator für die Dauer von 24 h im Kurzschlussbetrieb entladen, um eine Beeinflussung der Signalamplitude durch vorangegangene Formierphasen möglichst auszuschließen. Im qualitativen Vergleich der Graphenverläufe ist zu erkennen, dass im Fall der aktiven Filterung die Dämpfung der Signalamplitude im Bereich ab etwa 6 s verhältnismäßig ausgeprägt ist. Daher wurde im Rahmen der Auswertung isothermer Depolarisationsströme von unterschiedlich laborgealterten VPE-isolierten Modellkabelproben der Messdatensatz nach einfacher passiver Tiefpassfilterung herangezogen.

Da ein Einfluss der Messprozedur im Rahmen der Aufzeichnung isothermer Depolarisationsströme auf deren Auswertung ausgeschlossen werden sollte, wurden zur Festlegung der einzelnen Messparameter neben einer Auswertung relevanter Literaturstellen eigene Vorversuche durchgeführt. Die Höhe der verwendeten Ladespannung U_L ist als Kompromiss zwischen der Generierung einer ausreichend hohen Signalintensität und einer möglichst geringen Feldbeanspruchung der Isolierung während der Formierphase zu betrachten. Bild 3.10 veranschaulicht exemplarische Depolarisationsstromverläufe von mit 110 °C für 5000 h thermisch gealterten Modellkabelproben, wobei die Ladespannung bei sonst gleichen Versuchsparametern variiert wurde. Der Darstellung kann entnommen werden, dass eine Erhöhung der Ladespannung von 1 kV auf 3 kV im Wesentlichen eine Parallelverschiebung der Depolarisationsstromkurve zu größeren Stromwerten verursacht. Da nach einer Formierung mit 1 kV bereits eine gut auswertbare Signalintensität vorliegt, wurde für alle Untersuchungen zum isothermen Depolarisationsverhalten VPE-isolierter Modellkabelproben eine Ladespannung von 1 kV verwendet.

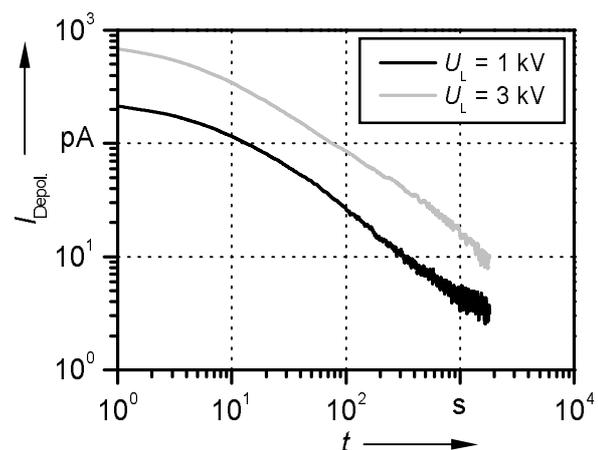


Bild 3.10: Exemplarische Depolarisationsströme $I_{\text{Depol.}}$ gealterter VPE-isolierter Modellkabelproben mit der Ladespannung U_L als Parameter

Neben der Höhe der Ladespannung stellt die Formierdauer einen maßgebenden Messparameter dar, da damit vorgegeben wird, welche Relaxationsprozesse aufgrund des Formiervorganges angeregt werden. Es sind maximal die Effekte registrierbar, dessen Relaxationszeiten höchstens der Ladedauer entsprechen. Als näherungsweise Vorgabe hinsichtlich einer geeigneten Wahl der Formierzeit findet sich in [Zaengl2003a] die Angabe, dass die Ladedauer t_L mindestens 5 bis 10 mal länger gewählt werden sollte, als die Messzeit t_M . Daher wurden die Verhältnisse $t_L/t_M = 10$ und $t_L/t_M = 0,18$ zur Prüfung des Einflusses unterschiedlicher t_L/t_M -Relationen auf den Verlauf isothermer Depolarisationsströme VPE-isolierter Modellkabel näher untersucht.

Bild 3.11 zeigt die auf den maximalen Stromwert bezogenen Depolarisationsstromverläufe dieser Vorversuche. Ein höheres t_L/t_M -Verhältnis bewirkt scheinbar eine Parallelverschiebung der Stromkurve zu höheren Werten. Andere Prozesse, die sich in einer Abweichung von dem beobachteten Parallelverschiebungseffekt äußern würden, sind nicht auszumachen. Daher werden bei dem untersuchten Isolierstoff offenbar alle relevanten Relaxationsmechanismen bei t_L/t_M -Verhältnissen zwischen 0,18 und 10 angeregt. Für die Parameter der an unterschiedlich gealterten Modellkabeln vorgenommenen Messungen wurde deshalb eine t_L/t_M -Relation von 1 mit Zeiten von jeweils 1800 s vorgegeben, die darüber hinaus auch als Kompromiss hinsichtlich eines zeitpraktikablen Messablaufes zu sehen ist.

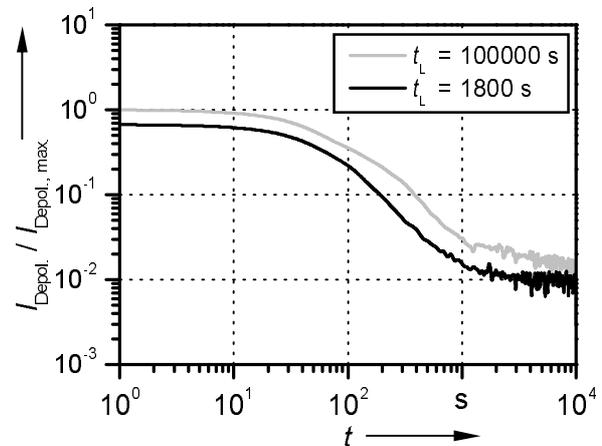


Bild 3.11: Bezogene Depolarisationsströme VPE-isolierter Modellkabel im Ausgangszustand mit der Ladedauer t_L als Parameter

Neben der Höhe der Formierspannung, den Zeiten für Aufladung und Messung repräsentiert die Kurzschlussdauer einen weiteren Messparameter. Durch das Kurzschließen des Dielektrikums unmittelbar nach dem Ende der Formierphase werden die Depolarisationsströme, die durch die Polarisation der Hochfrequenzkapazität der Isolierung und gegebenenfalls vorhandener Elektronen- bzw. Ionenpolarisationen verursacht werden, gegen Erde abgeleitet und somit nicht vom Strommessgerät erfasst. Sie stellen aufgrund ihrer hohen Frequenzen üblicherweise keine Informationsträger auf dem Gebiet der dielektrischen Spektroskopie von Isolierstoffen dar. Bei der Festlegung einer geeigneten Kurzschlusszeit ist darauf zu achten, dass sie nicht zu kurz gewählt wird, da in diesem Fall insbesondere bei höheren Stromamplituden Probleme durch die vom Messgerät zu beherrschende hohe Stromänderungsgeschwindigkeit herrühren. Im Fall von zu langen Kurzschlussphasen können bereits Ausgleichvorgänge langsamerer Polarisationsprozesse eintreten. Vor diesem Hintergrund wurde im Rahmen der hier durchgeführten Untersuchungen eine Kurzschlussdauer von 5 s festgelegt.

Der gesamte Messablauf erfolgte vollautomatisch bei Umgebungsbedingungen in einer geschirmten Messkabine, so dass vergleichbare Messzyklen realisiert werden konnten. Die Umgebungstemperatur betrug während der Messungen zwischen 16°C und 24°C . Die für die dielektrische Spektroskopie vorgesehenen Kabelproben wurden unmittelbar nach Beendigung eines Laboralterungsprogramms für die Depolarisationsstrommessung vorbereitet (s. Bild 3.12). Im

Fall erhöhter thermischer Alterungspegel wurde zur vollständigen Abkühlung der Proben vorher eine Wartephase von mindestens 12 h eingehalten. Zur Vermeidung von Störeinflüssen durch Garnituren erfolgten alle dielektrischen Spektroskopien im Zeitbereich ohne Verwendung von

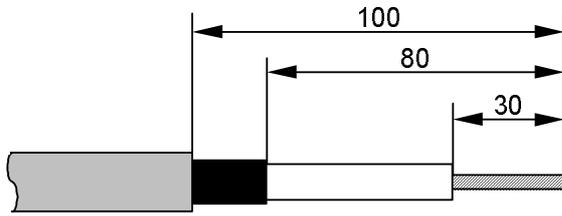


Bild 3.12: Absetzmaße in mm von VPE-Modellkabelproben für Messungen isothermer Depolarisationsströme

Endverschlüssen. Da die Formierfeldstärke mit $0,44 \text{ kV/mm}$ deutlich kleiner als die Betriebsfeldstärke $E_0 = 2,62 \text{ kV/mm}$ ist, ist die Wahrscheinlichkeit, dass durch an der Absetzkante der äußeren Leitschicht entstehende Feldüberhöhungen Oberflächenladungen zusätzlich im Isolierstoff während der Formierphase gespeichert werden, verhältnismäßig gering.

Darüber hinaus ist zu beachten, dass Umgebungsbedingungen, wie z. B. Luftfeuchte und Temperatur, einen Einfluss auf das Leitfähigkeitsverhalten von Isolierstoffoberflächen haben. Daher wurden ergänzende Voruntersuchungen hinsichtlich der Einwirkung relativer Luftfeuchten in Kombination mit verschiedenen Temperaturen auf die Oberflächenleitfähigkeit einer entsprechend den Angaben in Bild 3.12 präparierten Kabelprobe durchgeführt. Eine genauere Beschreibung dieser Versuche erfolgt im nächsten Unterkapitel.

3.3.1.2 Variation charakteristischer Umgebungsparameter

Die Untersuchungen hinsichtlich des isothermen Depolarisationsverhaltens unterschiedlich laborgealterter VPE-Isolierungen von Modellkabelproben erfolgten unter Umgebungsbedingungen. Da diese am Versuchsplatz geringfügig variierten, wurde eine Überprüfung des Einflusses der Umgebungsfeuchte und -temperatur auf den Oberflächenleckstrom I_{OL} in Abhängigkeit von der anliegenden Gleichspannung unter Berücksichtigung der durch die Kabelpräparierung vorgegebenen Oberflächengeometrie vorgenommen. Die Messungen der Oberflächenleckströme erfolgten unter Verwendung eines Elektrometers vom Typ 6514 der Firma *Keithley Instruments*. An die Empfehlungen in der Norm VDE 0308-1 anlehnend wurden mit Hilfe eines Klimagerätes unterschiedliche Klimasituationen im Bereich typischer Klimate (vgl. Tabelle 3.3) realisiert. Für einen Messdurchgang wurde zunächst eine vorbereitete Kabelprobe in einem Klimagerät positioniert und anschließend die infolge der mechanischen Kabelabsetzung in Kontakt mit der Umgebungsluft stehenden VPE-Oberfläche rückstandsfrei gereinigt. Danach wurde ein Berühren der gesäuberten Oberfläche vermieden, da die Feuchtigkeit der Haut mit ihrem Salz- und Säuregehalt den Oberflächenwiderstand leicht um ein bis zwei Zehner-

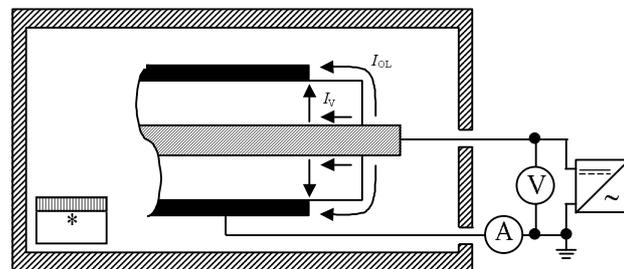


Bild 3.13: Versuchsaufbau zur Bestimmung des Oberflächenleckstromes I_{OL} bei verschiedenen Umgebungsbedingungen

Tabelle 3.3: Umgebungsbedingungen nach VDE 0308-1

Parameter	Einheit	Bezeichnung			
		kalt	feucht-warm	feucht	Normalklima A
Temperatur	°C	-10 ± 3	40 ± 2	23 ± 2	20 ± 2
relative Feuchte	%	< 20	93 ± 2	93 ± 3	65 ± 5

ein bis zwei Zehner-

potenzen herabsetzen kann. Nach Vorgabe verschiedener Feuchte- und Temperaturwerte wurde zur Sicherstellung konstanter Versuchsbedingungen festgelegt, dass sich die relative Feuchte um weniger als 3 % und die Temperatur um weniger als 1 K innerhalb von 1 h im Klimagerät ändern dürfen, bevor eine Messung durchgeführt werden kann. Eine längere Konditionierungsphase ist nicht notwendig, da ein Gleichgewichtszustand zwischen der Probe und dem umgebenden Klima nicht Gegenstand der Untersuchungen ist. Der verwendete Feuchtesensor der Firma *Panametrics* weist eine Genauigkeit von 0,1 % auf und wurde vor Versuchsbeginn mit Hilfe gesättigter Salzlösungen bei Temperaturen zwischen 18 °C und 21 °C kalibriert. Dazu wurden Calciumchlorid, Ammoniumchlorid, Kaliumsulfat, Natriumchlorid und Lithiumchlorid verwendet. Die eingesetzte Heizeinrichtung ermöglichte eine Temperaturvorgabe mit einer Genauigkeit von ± 1 K.

Durch Anlegen einer positiven Gleichspannung zwischen Innenleiter und äußerer Leitschicht, stellt sich neben dem Oberflächenleckstrom I_{OL} auch ein Strom durch das Isolierstoffvolumen I_V ein, der vom Strommessgerät ebenfalls erfasst wird. Dieser unerwünschte Anteil an der Messgröße kann jedoch nach der Norm VDE 0303-30 vernachlässigt werden, wenn der Abstand entlang der Oberfläche zwischen den beiden Messelektroden mindestens gleich der doppelten Probekörperdicke ist. Diese Bedingung ist mit den im Rahmen dieser Arbeit benutzten Absetzmaßen erfüllt.

Die Empfehlungen der Norm VDE 0303-30 berücksichtigend wurde 60 s nach Beaufschlagung der Probe mit einer positiven Gleichspannung von 0,1 kV, 0,5 kV, 1 kV, 1,5 kV und 2,5 kV der über die VPE-Oberfläche zur äußeren Leitschicht abfließende Strom gemessen. Zusätzlich erfolgte eine Aufnahme der entsprechenden Stromwerte nach einer Wartezeit von 120 s, um insbesondere bis zu einer Spannung von 1 kV zu prüfen, ob der sich einstellende stationäre Stromwert gegebenenfalls unzulässig hohe Werte annimmt. In diesem Fall würde der Formiervorgang mit einer positiven Gleichspannung von 1 kV im Rahmen der isothermen Depolarisationsstrommessungen aufgrund einer unvollständigen Polarisation des Dielektrikums mit der erzeugten Polarisationsenergie fehlerbehaftet sein. Jede Strommessung fand mit drei Wiederholungen statt. Die entsprechenden Diagramme in Kapitel 4.3.2 zeigen jeweils die arithmetischen Mittelwerte sowie die entsprechenden Stichproben-Standardabweichungen.

3.3.1.3 Auswertung und Ergebnisdarstellung

Die Auswertung der zeitabhängigen isothermen Depolarisationsströme kann durch Verwendung verschiedener empirischer Formulierungen erfolgen (vgl. Kapitel 3.3.1). Für die Auswahl eines geeigneten Ansatzes ist wesentlich die charakteristische Materialstruktur zu berücksichtigen, da sie bei festen Isolierstoffen das Relaxationsverhalten maßgeblich bestimmt. Im Fall verlustarmer polymerer Dielektrika beeinflusst die Heterogenität der Materialstruktur das Relaxationsverhalten, so dass z. B. von Überlagerungseffekten einzelner Relaxationsprozesse Schwierigkeiten bei der versuchstechnischen Separation isolierter Relaxationen herrühren. Eine eindeutige Zuordnung von Relaxationsmechanismen zu den relevanten Ursachen ist daher oftmals nicht möglich. Depolarisationserscheinungen bei verlustarmen VPE-Materialien werden vorwiegend durch Grenzflächenpolarisationen innerhalb des Isolierstoffvolumens an vorhandenen Strukturinhomogenitäten sowie dipolare Polarisationen verursacht, wobei Letztere einen wesentlich geringeren Umfang aufweisen. Darüber hinaus sind auch mikroskopische Grenzflächenpolarisationen von Bedeutung, die bei festen Isolierstoffen geringer Leitfähigkeit Mechanismen bezeichnen, die das Verweilen und den Transport von Ladungsträgern in energetisch lokalisierten Zuständen beschreiben. Vor diesem Hintergrund wurden die gemessenen zeitabhängigen Depolarisati-

onsströme im Rahmen dieser Arbeit durch eine abfallende Exponentialfunktion 3. Ordnung angenähert:

$$I_{\text{Depol.}}(t) = I_0 + \sum_{i=1}^3 a_i \cdot \exp(-t/\tau_i) \quad (3.2)$$

mit I_0 : Offset
 a_i : Teilamplituden der einzelnen Exponentialglieder
 τ_i : Relaxationszeitkonstanten der einzelnen Exponentialglieder.

Zur Untersuchung von Korrelationseffekten einzelner Beanspruchungsgrößen aus der Laboralterung VPE-isolierter Modellkabel mit spezifischen Gleichungsparametern gemäß Gleichung 3.2 wurden die für Relaxationsprozesse charakteristischen Relaxationszeitkonstanten $\tau_{1..3}$ herangezogen. Ein weiterer Indikator für die Annahme von drei abzugrenzenden Relaxationsmechanismen kann darin gesehen werden, dass die einzelnen Moleküle fester Dielektrika eine vorwiegend ellipsenförmigen Kontur aufweisen und daher in Richtung der Raumachsen verschiedene Reibungskoeffizienten besitzen [Kao2004].

Für die Approximation der Messwerte durch Gleichung 3.2 wurde unter der Programmierumgebung „TestPoint“ der Firma *Capital Equipment* ein modifizierter „simulated annealing“-Algorithmus implementiert, der ohne die Vorgabe empirischer Startwerte oder a priori Informationen konvergiert. Die Messdaten werden dabei zunächst mit Hilfe des *Nalimov*-Ausreißertests vorbehandelt, der aus dem Streubereich der Messdatengesamtheit herausragende Einzelmesswerte entfernt. Anschließend startet ein iteratives Berechnungsverfahren, das von Multistartvarianten mit Zufallszahlen ausgeht und unter Beachtung einer Akzeptanzfunktion

$$\text{Zufallszahl} < \exp(-(\Delta_n - \Delta_a)/\Delta_a) \quad (3.3)$$

mit Δ_n : neuer Qualitätswert einer Lösungsparameterkombination
 Δ_a : alter Qualitätswert einer Lösungsparameterkombination

in einer lokalen Variationssuche ein globales Lösungsoptimum zur Bestimmung der charakteristischen Gleichungsparameter ermittelt. Der Qualitätswert einer Lösungsparameterkombination beschreibt dabei die Gesamtheit aller Betragsdifferenzen zwischen den Einzelmesswerten und ihren Approximationen. Das Verfahren aus dem Bereich der kombinatorischen Optimierung ist durch Nichtanwendung von Heuristiken hinsichtlich seiner Rechendauer nicht optimiert, da mit dieser Maßnahme in der Regel eine Genauigkeitsreduktion verbunden ist. Der Verzicht auf empirische Startwerte führt ebenfalls zu längeren Rechenlaufzeiten. Vor diesem Hintergrund wurde für die Berechnungen auf einem 200 MHz-Arbeitsplatzrechner eine maximale Gesamtrechnzeit von 4 h festgelegt. Zur statistischen Absicherung wurde jeder Messdatensatz fünf mal ausgewertet. Die Relaxationszeitkonstanten wurden anschließend durch Bildung der arithmetischen Mittelwerte samt Stichproben-Standardabweichungen bestimmt.

Im Folgenden sollen einige Anmerkungen zur Abgrenzung des „simulated annealing“-Verfahrens gegenüber anderen Approximationsmethoden aus dem Bereich der kombinatorischen Optimierung erfolgen, die dessen Vorteile verdeutlichen [Davidson1989, Gidas1995]. Die Methode der kleinsten Fehlerquadrate („least squares method“) ist ein verbreitet angewendetes ma-

thematisches Verfahren zur Funktionsapproximation, wobei gegebene Datenpunkte durch eine möglichst genau passende, parameterunabhängige Modellfunktion angenähert werden sollen. Prinzipiell werden die Funktionsparameter numerisch ermittelt, indem die Summe der quadratischen Abweichungen der Funktion von den Datenwerten minimiert wird. Oft sind nichtlineare Modellfunktionen zur Approximation erforderlich, deren Normalgleichungssystem mit Hilfe numerischer Verfahren gelöst werden kann. So wird oft ein iterativer Ansatz nach dem *Gauß-Newton*-Verfahren eingesetzt, dessen Konvergenz jedoch nicht gesichert ist. Aktuelle Softwareprogramme, wie z. B. MATLAB® (optimization toolbox – nonlinear least squares implementation), nutzen mit dem *Levenberg-Marquardt*-Algorithmus eine Variante des *Gauß-Newton*-Verfahrens zur Approximation, dessen Konvergenz jedoch ebenfalls nicht eindeutig ist. Große Bedeutung hinsichtlich des Konvergenzverhaltens ist bei der Methode der kleinsten Fehlerquadrate dem Startwert der Iterationsprozedur sowie der Datenwertstreuung zuzuschreiben. Nur bei geschickter Vorgabe, z. B. aufgrund von a priori Informationen, lässt sich eine globale Konvergenz erzielen. Im gegenteiligen Fall sowie bei starker Nichtlinearität der Modellfunktion liefert eine iterative Lösung mit der Methode der kleinsten Fehlerquadrate in der Regel keine zuverlässigen Resultate. Daher sind Approximationsverfahren vorzuziehen, die die Nichtlinearität der Modellfunktion geeignet berücksichtigen und unabhängig von den Startwertvorgaben in ein globales Lösungsoptimum konvergieren. Als gebräuchliche Methoden sind folgende Verfahren zu erwähnen:

- „grid search“,
- „monte carlo“,
- „simulated annealing“.

Die deterministische „grid search“-Methode und das stochastische „monte carlo“-Verfahren zeichnen sich in der Regel durch einen hohen Rechenaufwand aus und arbeiten nachteilig weitgehend ungerichtet, d. h. dass mögliche wichtige Informationen auf vorangegangenen Lösungsschritten in nachfolgenden Rechenprozeduren ignoriert werden. Im Gegensatz zu diesen beiden Verfahren nutzt der „simulated annealing“-Ansatz bereits gefundene, viel versprechende Modellparameterkombinationen, indem deren unmittelbares Umfeld stochastisch nach verbesserten Parameterkonstellationen abgesucht wird. Durch diese Effizienzsteigerung gegenüber den zuvor genannten Techniken wird zudem im Gegensatz zur Methode der kleinsten Fehlerquadrate eine globale Konvergenz im Lösungsoptimum ermöglicht. Darüber hinaus liegt beim „simulated annealing“-Ansatz eine generelle Unabhängigkeit von den Startwerten vor.

Das „simulated annealing“-Verfahren ist eine randomisierte Methode, die zur Bestimmung von Näherungslösungen kombinatorischer Aufgabenstellungen eingesetzt wird. Dabei wird mit einer zulässigen Lösung des kombinatorischen Optimierungsproblems gestartet und eine zufällig gewählte, benachbarte Lösung erzeugt. Besitzt diese Lösung einen besseren Zielfunktionswert als die Startlösung, beginnt mit ihr die Iterationsprozedur. Andernfalls wird die neue Lösung nur mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit akzeptiert. Diese Wahrscheinlichkeit nimmt mit steigender Iterationszahl ab. Dieser Effekt wird auch als „annealing“ bezeichnet. Das Einräumen nichtoptimaler Lösungen dient vorwiegend dazu, eine globale Lösungskonvergenz zu erzielen.

3.3.2 Thermisch stimulierte Depolarisation (TSD)

Messungen von thermisch stimulierten Depolarisationsströmen werden vornehmlich zur Untersuchung von Polarisationseffekten in festen Isolierstoffen mit niedriger Leitfähigkeit und zum

Studium von Raumladungseffekten in polymeren Dielektrika durchgeführt. Es sind mit dem Messverfahren Aussagen in folgenden Bereichen möglich:

- Ladungsspeichervermögen,
- Leitungsverhalten,
- Dichte und energetische Tiefe von Ladungsträgerhaftstellen,
- Raumladungen.

Als Ansatz für diese Untersuchungsmethode kann die Tatsache herangezogen werden, dass unter der Wirkung von Gleichfeldstärken im Dielektrikum vorhandene Dipole ausgerichtet oder Ladungsträger ihrer Polarität entsprechend verschoben und an inneren Grenzflächen angelagert werden. Die Formierungseffekte werden durch ein gegenüber Raumbedingungen erhöhtes Temperaturniveau erleichtert. Durch eine geeignete Wahl der so genannten Formiertemperatur kann sichergestellt werden, dass die durch die Gleichfeldformierung hergestellte Ordnungsstruktur im Isolierstoff erhalten bleibt und erst nach erneuter Energiezufuhr wieder aufgelöst wird. Infolge der damit verbundenen Relaxation polarisierter Ladungsträgerhaftstellen stellt sich bei einer konstanten Materialerwärmung ein messtechnisch erfassbarer Depolarisationsstrom ein, der über die Probenoberfläche abfließt. Dieser Effekt stellt sich ohne zusätzliche Feldunterstützung ein [Olshausen1979].

Zum Verständnis energetischer Tiefen von Ladungsträgerhaftstellen und des Leitungsverhaltens polymerer Isolierstoffe erfolgt an dieser Stelle eine Beschreibung der Energieniveaustuktur für polymere Dielektrika. Ausgehend von einer für Idealkristalle entwickelten Modellvorstellung

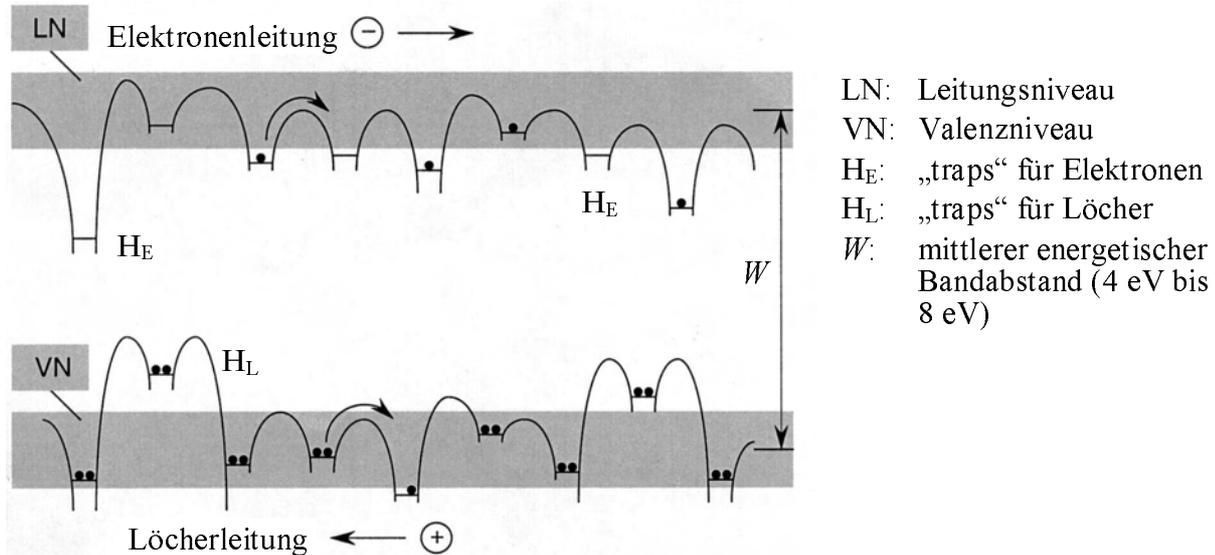


Bild 3.14: Energieniveauschema polymerer Isolierstoffe [Bauser1972]

nach Fröhlich mit durch eine so genannte verbotene Zone scharf voneinander abgegrenzten Energiebändern wurde durch Bauser dieses Bändermodell dahingehend erweitert, dass die durchgehenden separaten Energieniveaus durch eine Vielzahl lokalisierter Einzelniveaus unterschiedlicher energetischer Lage ersetzt wurden [Bauser1972]. Diese Weiterentwicklung stützt sich auf der Tatsache, dass Polymere infolge ihrer teilkristallinen Struktur nicht mehr als fehlerstellenfreie Idealkristalle betrachtet werden können. Die lokalisierten Einzelniveaus sind durch Potenzialberge voneinander getrennt und können auch innerhalb der verbotenen Zone existieren (s. Bild 3.14). Sie sind elektrisch neutral und werden, wenn sie unbesetzt sind, als „traps“ be-

zeichnet, da sie Elektronen einfangen und speichern können („trapping“). Sind sie dagegen mit Elektronen besetzt, so werden die lokalisierten Einzelniveaus Donatorstellen genannt. Eine Unterscheidung zwischen „traps“ erfolgt hinsichtlich ihrer energetischen Tiefe, die den Abstand der lokalisierten Zustände zum Leitungsband beschreibt. Einen dominierenden Anteil zum Leitungsverhalten teilkristalliner Dielektrika tragen „traps“ geringer energetischer Tiefe bei, da durch Zufuhr elektrischer und/oder thermischer Energie mit hoher Wahrscheinlichkeit eine Elektronenaktivierung zu beobachten ist. Da die Dichte der lokalisierten Zustände in der verbotenen Zone aufgrund geringer Ladungsträgerverweildauern mit wachsendem mittleren Abstand vom Leitungsband abnimmt, existieren vorwiegend „traps“ geringer energetischer Tiefe, so dass z. B. das Leitungs- und Durchschlagverhalten von Polymeren im Kurzzeitbereich bevorzugt von derartigen „traps“ beeinflusst wird [Beyer1986, Schneider1996].

In lokalisierten Zuständen größerer energetischer Tiefe steigt die Verweildauer der Elektronen aufgrund des größeren Abstandes vom Leitungsband an, womit ein Raumladungsaufbau im Isolierstoff eingeleitet werden kann. Infolge des großen Bandabstandes wird der in VPE dominierende Ladungsträgertransportmechanismus in Form von so genannten Hüpf- und Gleitprozessen (Hoppingleitung) zwischen lokalisierten Zuständen innerhalb der verbotenen Zone bestimmt. Dabei werden in den kristallinen Bereichen eines teilkristallinen Polymeren Hoppingleitungsvorgänge durch eine weitgehend parallele Kettenausrichtung erleichtert. Allerdings befinden sich hier infolge hoher Aktivierungsenergien für Platzwechselabläufe nur wenige Ladungsträger, so dass in VPE die meisten Transportvorgänge in den amorphen Zonen stattfinden. Die „Hoppingleitung“ stellt einen stochastischen Prozess dar. Dabei steigt die Sprungwahrscheinlichkeit der Ladungsträger zwischen lokalisierten Zuständen mit zunehmender Temperatur und elektrischer Feldstärke an und nimmt demgegenüber mit der Höhe der dabei zu überwindenden Energiebarrieren ab [Turnhout1980, Beyer1986, Schneider1996]. Die Verweildauer t_t von Ladungsträgern in „traps“ kann durch den folgenden Zusammenhang bestimmt werden [Bube1960]:

$$t_t = [\nu_0 \cdot \exp(-W_t / k \cdot T)]^{-1} \quad (3.4)$$

mit ν_0 : Fluchtfrequenz ($5 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1} \dots 2,5 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ für PE aus [Partridge1965])
 W_t : energetische „trap“-Tiefe
 k : Boltzmann-Konstante ($1,380662 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$)
 T : absolute Temperatur.

Aus Gleichung 3.4 wird ersichtlich, dass die Aufenthaltszeiten von Ladungsträgern in energetisch lokalisierten Zuständen und somit das Leitungsverhalten polymerer Isolierstoffe von der Materialtemperatur und der energetischen „trap“-Tiefe wesentlich bestimmt wird. Als Ursache für die Existenz von „traps“ werden grundsätzlich strukturelle Unregelmäßigkeiten teilkristalliner Polymere angesehen. Aber auch chemische Verbindungen, die sowohl in Form von dem Material im Herstellungsprozess zugesetzten Stoffen vorliegen als auch durch alterungsbedingte Effekte verursacht werden können, stellen lokalisierte Zustände dar. Es zeigt sich daher hier bereits der Einfluss der Polymormorphologie auf das Ladungsspeicherungs- und Leitungsverhalten. Dieser Umstand findet sich auch darin wieder, dass die Ladungsträgerverweildauer in „traps“ wesentlich größer ist, als die benötigte Zeit für den Übergang zwischen zwei lokalisierten Zuständen [Röhl1982]. Die Leitfähigkeit des polymeren Isolierstoffes wird somit vorwiegend durch die Dichte und die energetische Tiefe der im Isoliervolumen enthaltenen „traps“ bestimmt.

Neuere Untersuchungen im Bereich der molekularen Modellierung von Energiebereichen lokalisierter Zustände in polymeren Isolierstoffen haben gezeigt, dass zwischen physikalischen und chemischen „traps“ unterschieden werden kann [Meunier2000]. Als Ansatz werden dabei so genannte Defektenergien auf der Basis molekularer Elektronenaffinitäten verwendet. Physikalische „traps“ resultieren von Konformationsdefekten und besitzen energetische „trap“-Tiefen im Bereich von 0,15 eV bis 0,3 eV. Chemische „traps“ werden einerseits durch Defekte der Polymerkette, wie z. B. Hydroxyl- oder Ketonegruppen, mehrfache Kohlenstoffbindungen oder Kettenverzweigungen, und andererseits von Vernetzerspaltprodukten hervorgerufen [Meunier2001]. Dabei werden „traps“ geringer energetischer Tiefe vorwiegend von nicht konjugierten mehrfachen Kohlenstoffbindungen oder Hydroxylgruppen verursacht und „traps“ größerer energetischer Tiefe durch Carbonylgruppen und konjugierte Doppelbindungen charakterisiert. Die berechneten energetischen Niveaus von chemischen „traps“ liegen zwischen 0,1 eV und 1,5 eV [Meunier2001].

In der Beschreibung von Ladungsträgertransportmechanismen in Form von Hoppingleitungsprozessen zwischen lokalisierten Zuständen finden Relaxationen von Gitterdeformationen nach so genannten „detrapping“-Vorgängen keine Berücksichtigung. Daher wird in [Blaise1995] ein Konzept unter Berücksichtigung von Polaronen¹⁴ vorgestellt, das die Abgabe von Ladungsträgern aus „traps“ („detrapping“) mit Speicherungseffekten von Polarisationsenergien in Form von Schockwellen verbindet. Infolgedessen ist eine Unsymmetrie zwischen der Energieaufnahme aufgrund eines „trapping“-Vorganges und dem Energieverlust nach einem „detrapping“-Prozess zu erwarten, die zu lokalen Energieakkumulationen führen kann. Bei Überschreitung kritischer materialspezifischer Bedingungen ist mit einer Initiierung von Durchschlagvorgängen zu rechnen [Blaise1995]. In diesem Zusammenhang wird eine energetische Mobilitätsbarriere W_M als Abgrenzung zwischen Ladungsträgertransportmechanismen in amorphen und kristallinen Bereichen betrachtet, ober- und unterhalb derer jeweils verschiedene Vorzugszustände den Ladungsträgertransport bestimmen. Dabei erfolgt eine Unterscheidung zwischen „traps“ und intrinsischen Defekten wie z. B. Leerstellen oder Interstitien. In teilkristallinen Polymeren erstreckt sich die erforderliche Bandenergie für Ladungsträgeraktivitäten aus lokalisierten Zuständen innerhalb der verbotenen Zone über einen Bereich von 0,01 eV bis 1 eV [Blaise2001].

Eine Übertragung dieses Ansatzes auf die speziellen Charakteristika von VPE ist applizierbar, da in polymeren Werkstoffen eine Polaronenbildung z. B. durch Oxidationsvorgänge der Polymermatrix erfolgen kann. Dabei stellt sich deren Stabilisierung durch Gitterdeformationen ein, die wiederum als Vorzugspfad für Ladungsträgertransportmechanismen betrachtet werden können. Die Dynamik der quasifreien Ladungsträger wird im Wesentlichen durch die Wechselwirkung zwischen Selbstlokalisierung und so genannten Tunnelvorgängen zwischen lokalisierten Zuständen charakterisiert, wobei allgemein Elektronen unter thermischer Aktivierung von einem lokalisierten Zustand in den nächsten tunneln können, wenn das Energieangebot zur Anregung aus „traps“ in das Leitungsband nicht direkt ausreicht [Kittel1986, Blaise1995, Schaumburg1997].

Aufgrund der Tatsache, dass PE eine negative Elektronenaffinität aufweist, beschränkt sich der Ladungsträgertransport von Elektronen vornehmlich auf tunnelähnliche Wege im intermolekularen Raum zwischen den einzelnen Polymerketten. Diese Pfade sind grundsätzlich in den beiden un-

¹⁴ Bei einem Polaron handelt es sich um eine Elektron-Phonon-Wechselwirkung, bei der eine Ladung in der sie umgebenden Matrix für eine Verschiebung der Ladungsschwerpunkte sorgt. Die Kombination von Elektron und Verzerrungsfeld wird in Isolatoren als Polaron bezeichnet [Kittel1986].

terschiedlichen Strukturbereichen teilkristalliner Polymere vorhanden. In den amorphen Bereichen sind sie jedoch für Elektronen aufgrund des größeren freien Volumens leichter zugänglich. Das Transitverhalten der Elektronen wird dabei von Energiebarrieren bestimmt, deren Höhe infolge von thermisch induzierten Segmentkonformationen innerhalb des Polymergefüges fluktuierend ist. Die Elektronenmobilität ist somit in direktem Zusammenhang mit dem Kristallinitätsgrad zu betrachten [Lewis2001].

In Bezug auf die zuvor beschriebenen Ladungsträgertransportmechanismen und der für teilkristalline Dielektrika relevanten Energieniveaustuktur ist hinsichtlich von Erkenntnissen bezüglich des Raumladungsaufbaus zu beachten, dass aus Messungen von thermisch stimulierten Depolarisationsströmen in der Regel nicht eindeutig auf die gesamte im Isolierstoff gespeicherte Ladung geschlossen kann. Zum einen liegen die energetischen Tiefen von „traps“ verteilt vor, wodurch unter Umständen größere energetische Tiefen nicht korrekt detektiert werden können. Zum anderen nehmen insbesondere im Bereich der Schmelztemperatur der kristallinen Domänen ohmsche Leitungsanteile zu und die maßgebend beteiligte Ladungsausbeute ab. Jedoch kann aus der temperaturabhängigen Lage der TSD-Strommaxima ein Bezug zu theoretischen Kenngrößen, wie z. B. der so genannten Aktivierungsenergie und vorangegangenen elektrischen und thermischen Beanspruchungen, gefunden werden, da infolge von Eigenfelddepolarisationen eine Bestimmung der Aktivierungsenergien von „traps“ möglich ist [Schneider1996].

3.3.2.1 Versuchsaufbau und -durchführung

Für die Messungen von thermisch stimulierten Depolarisationsströmen vollständiger VPE-isolierter Modellkabelproben nach verschiedenen Alterungsbeanspruchungen wurde der in Bild 3.15 skizzierte Versuchsaufbau verwendet. Der gesamte in einer geschirmten Messkabine

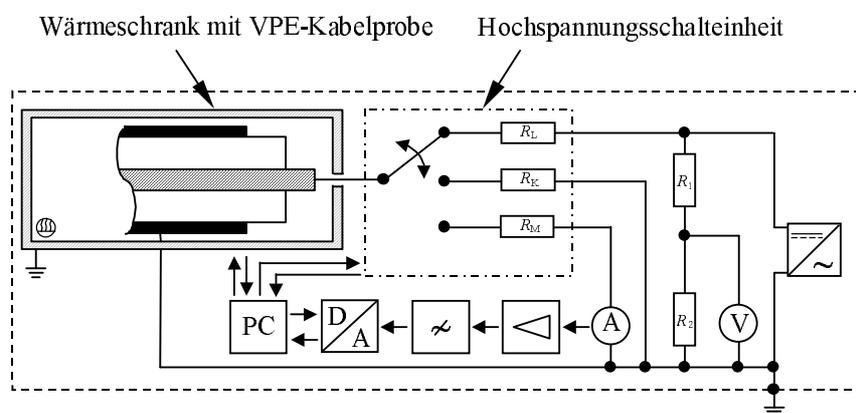


Bild 3.15: Versuchsaufbau zur Messung von thermisch stimulierten Depolarisationsströmen unterschiedlich laborgealterter VPE-isolierter Modellkabelproben

befindliche Prüfaufbau einschließlich der Temperaturregulierung mittels mehrerer Thermoelemente sowie entsprechender Schalteinheiten ist PC-gesteuert, so dass ein automatischer, genau reproduzierbarer Programmablauf vergleichbare Randbedingungen sicherstellt. Die Kabelproben wurden aufgrund von maximalen Versuchstemperaturen von ca. 145 °C jeweils ohne äußeren Schutzmantel in

den Versuchsstand eingebracht. Hinsichtlich der von üblichen TSD-Messungen abweichenden Prüfkörperdicke erfolgte zunächst eine Erfassung des während einer Heizphase auf einen beliebigen Sollwert für die Leitertemperatur entstehenden Temperaturgradienten über der gesamten Kabelisolierung in Abhängigkeit von der Heizdauer. Dazu wird entsprechend dem in Kapitel 3.1 beschriebenen Verfahren ein Temperatursensor zur Aufnahme der Leitertemperatur in die Kabelisolierung eingebracht und gleichzeitig die aktuelle Oberflächentemperatur registriert. Bild 3.16 zeigt die für die jeweils vorgegebenen Leitertemperaturen von 60 °C und 80 °C ermittelten Re-

sultate. Der Darstellung kann entnommen werden, dass sich nach ca. 30 min Heizzeit unter gleichen Messbedingungen eine Temperaturdifferenz zwischen Innenleiter und Oberfläche einstellt, die etwa den Anfangsbedingungen entspricht. Daher wurde für die Versuche eine Nachlaufdauer von 30 min zur Vergleichmäßigung der Temperaturverhältnisse im Isolierstoffvolumen eingehalten.

Die Untersuchung von Raumladungseffekten polymerer Isolierstoffe und des Ladungsspeicherverhaltens fester Dielektrika nach verschiedenen Alterungsbeanspruchungen mit der Methode der thermisch stimulierten Depolarisation weist eine Sensitivität der Stromverläufe I_{TSD} hinsichtlich der charakteristischen Formierparameter auf.

Dazu kann der entsprechenden Literatur für TSD-Experimente mit PE bzw. VPE eine große Bandbreite der Parameter entnommen werden, für die in Tabelle 3.4 eine Auswahl zusammengestellt ist. Es ist ersichtlich, dass keine einheitliche Vorgabe im Hinblick auf die zu wählenden Formiergrößen existiert. Dieser Umstand ist vermutlich auf unterschiedliche Versuchs- und Anlagenbedingungen, voneinander abweichende Empfindlichkeiten der eingesetzten Messgeräte oder verschiedene Probenformen zurückzuführen. Grundsätzlich ist durch die Festlegung der Formierwerte sicherzustellen, dass

Tabelle 3.4: Literatúrauswahl von Formierparametern für TSD-Untersuchungen unter Verwendung verschiedener Probenformen

Autor / Jahr	Material / Form (Dicke)	Heizrate h in K/min	Formierfeld- stärke E_F in kV/mm	Formiertem- peratur ϑ_F in °C	Formierdauer t_F in min
Fischer / Röhl (1973)	LDPE / Folie (100 μm)	0,3...60	12	40; -180	30
Flemming u. a. (1990)	VPE / Folie (100 μm)	3	10	20	30
Gubanski u. a. (1992)	PE / Folie (200 μm)	7	2	50	15
Aymot u. a. (1996)	VPE / Band (200 μm)	10	1,6	110	15
Holbøll u. a. (1998)	VPE / Kabel (4,5 mm)	0,5	1,6...14	107	120
Li u. a. (2001)	VPE / Platte (1,2 mm)	4	33,3	?	4320

durch die Messspezifika selbst keine Materialveränderung im Hinblick auf Raumladungseffekte oder Ladungsspeichervorgänge zu erwarten sind. Es wurde darauf geachtet, dass im Vergleich zu den Untersuchungen isothermer Depolarisationen von VPE-isolierten Modellkabelproben ein ähnlicher Energieeintrag zur Polarisation des Dielektrikums wirksam ist. Bild 3.17 zeigt den prinzipiellen Ablauf einer TSD-Messung mit den relevanten Versuchsparametern.

Dem oberen Diagramm in Bild 3.17 sind die maßgebenden Parameter zu entnehmen. Zur Formierung wurden die Kabelproben bei einer Temperatur von 90 °C mit einer positiven Gleichfeldstärke von 0,44 kV/mm beaufschlagt, wobei die Temperatur nach 20 min bei weiter anste-

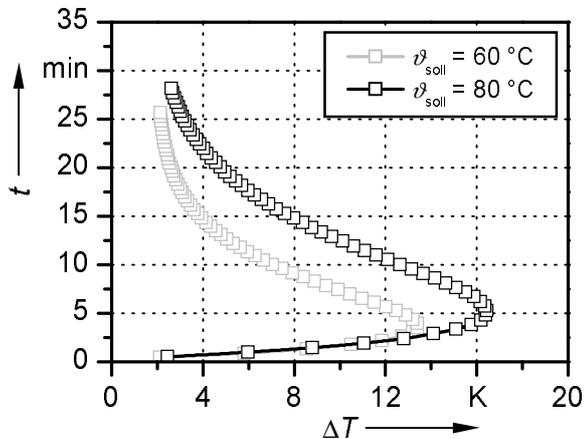


Bild 3.16: Ermittelter Temperaturgradient ΔT über der Kabelkonstruktion für verschiedene Sollwerte ϑ_{soll} der Leitertemperatur

hendem Feld abgesenkt wurde und das Formierfeld für zusätzliche 10 min einwirkte. Der in der Isolierung auftretende Temperaturgradient ist durch bereits erwähnte Nachlaufzeiten beim Aufheiz- und Abkühlvorgang berücksichtigt worden. Nach Abkühlung der Probe auf Raumtemperatur erfolgte eine zeitlineare Kabelaufwärmung mit 3 K/min bis zu einer Temperatur von ca. 145 °C bei gleichzeitiger Messung des Depolarisationsstromes.

Im Anschluss an einen schnell abklingenden Stromanteil bei Raumtemperatur wird erst wieder ein Stromfluss bei höheren Temperaturen registriert, der dann entsprechend der Verteilung energetisch relevanter „traps“ ein mehr oder weniger stark ausgeprägtes Maximum aufweist. Exemplarische TSD-Stromverläufe von zwei unterschiedlich gealterten Kabelproben können dem unteren Diagramm in Bild 3.17 entnommen werden. Im Hinblick auf die Anforderungen an die Messtechnik zur sicheren Erfassung der TSD-Ströme stellen die gewählten Formierparameter einen guten Kompromiss bezüglich der Signalqualität dar.

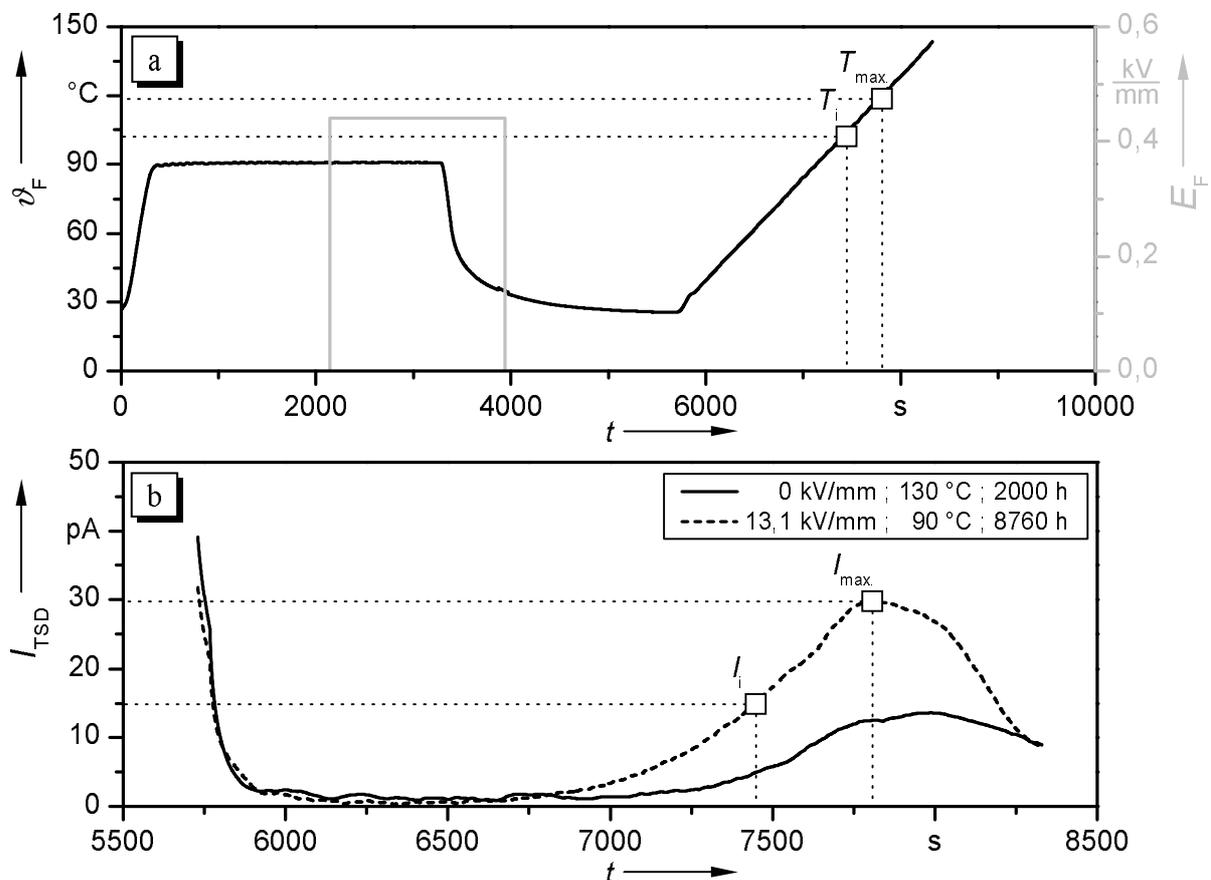


Bild 3.17: a) Prinzipielles Messschema thermisch stimulierter Depolarisationsströme I_{TSD} mit der Formiertemperatur ϑ_F und der Formierfeldstärke E_F in Abhängigkeit von der Messdauer t (T_{max} – Temperaturwert der maximalen TSD-Stromintensität; T_i – dem Stromwert I_i zugehöriger Temperaturwert)
 b) Exemplarische Stromverläufe I_{TSD} unterschiedlich gealterter Kabelproben in Abhängigkeit der Messdauer t (I_{max} – Stromwert der maximalen TSD-Stromintensität; I_i – Stromwert mit $I_i = 0,5 \cdot I_{max}$)

Ein charakteristisches TSD-Strommaximum bildet sich allgemein aufgrund dipolarer Desorientierungen oder Ladungsträgerfreisetzungen aus „traps“ aus, wobei infolge von Überlagerungseffekten in heterogenen Materialstrukturen separate Relaxationsmechanismen nur sehr problema-

tisch extrahiert werden können. Weiterhin tragen, insbesondere bei geringem elektrischen Energieeintrag während der Formierphase, auch Grenzflächenladungen, die sich infolge des Formierprozesses an inneren Grenzflächen der teilkristallinen Materialstruktur ausbilden, zur messbaren TSD-Stromaktivität bei. Während der zeitlinearen Probenerwärmung und Kurzschlussbedingungen werden diese Grenzflächenladungen infolge lokaler Feldumkehr in den verschiedenen Bereichen kompensiert, wobei Neutralisationsladungen entgegengesetzter Polarität durch ohmsche Leitfähigkeitsvorgänge in Richtung der Grenzflächen befördert werden. Der Neutralisationsprozess findet in einem kleinen Zeitfenster statt, so dass eine Erscheinung im TSD-Stromspektrum in Form eines Peaks bei hohen Temperaturen möglich ist [Turnhout1980].

Da bei heterogenen Dielektrika oft mehrere, sich teilweise überlagernde Relaxationsmechanismen vorliegen, kann unter Umständen eine Absenkung der Heizrate zu deren Separation führen. Dabei ist jedoch zu beachten, dass die Stromamplitude in diesem Fall infolge der konstant bleibenden, aus dem Isolierstoffvolumen extrahierbaren Ladungsmenge abnimmt [Turnhout1980]. Weiterhin ist bei der Wahl der Formierfeldstärke zu berücksichtigen, dass hinsichtlich der durch Injektionsvorgänge bedingten Raumladungseffekte eine wesentliche Beeinflussung durch die energetische Barriere zwischen metallischer Kontaktelektrode und angrenzendem Dielektrikum vorliegt, die jedoch von der durch die elektrische Feldstärke verursachten Raumladungsrückwirkung abhängig ist. Liegen die Feldstärkewerte unterhalb von etwa 0,5 kV/mm, so kann von rückwirkungsfreien Gegebenheiten aufgrund von Raumladungen ausgegangen werden [Schneider1996].

Der Ladungstransport durch „traps“ geringer energetischer Tiefe wird durch deren Besetzung infolge der Gleichfeldformierung initiiert oder aber auch nur partiell angeregt. Aufgrund der hier eingprägten geringen Formierfeldstärke sind keine wesentlichen Injektionsvorgänge aus den Kontaktelektroden in den Isolierstoff zu erwarten. Vielmehr erfolgt durch die Formierphase eine je nach den lokalen energetischen Gegebenheiten mehr oder weniger stark ausgeprägte Orientierung bereits im Dielektrikum vorhandener Ladungsträger, die sich vorwiegend in bevorzugten „traps“ befinden und durch die Beanspruchungsvergangenheit des Isolierstoffes beeinflusst werden. Dabei kann sowohl eine Änderung der Anzahl gespeicherter Ladungsträger als auch eine Variation der Sprungwahrscheinlichkeit zwischen lokalisierten Zuständen beobachtet werden.

3.3.2.2 Variation charakteristischer Versuchsparameter

Aufgrund verschiedener Temperaturabhängigkeiten von den Raumladungsaufbau in polymeren Dielektrika beeinflussenden Mechanismen sind Voruntersuchungen mit Temperaturvariation unter vergleichbaren Messbedingungen sinnvoll, um geeignete Werte für die Formiergrößen festzulegen. Dazu wurde bei sonst fest vorgegebenen Formierwerten (vgl. Kapitel 3.3.2.1) die Formiertemperatur zwischen 20 °C und 110 °C verändert, da in diesem Bereich die größte Einwirkung auf charakteristische Kurvenparameter zu erwarten ist. In Bild 3.18 sind die Resultate dieser Vorversuche dargestellt. Der Graphik kann entnommen werden, dass mit zunehmender Formiertemperatur ein Anstieg des Strommaximums sowie dessen Verschiebung hin zu höheren Temperaturen eintritt. Zurückgeführt werden kann diese Beobachtung darauf, dass die Besetzungswahrscheinlichkeit energetisch relevanter „traps“ während der Formierphase mit steigender thermischer Energiezufuhr zunimmt und daher größere maximale TSD-Stromintensitäten infolge der Relaxation des zuvor fixierten Ladungszustandes registriert werden. Da jedoch energetisch erreichbare „traps“ in ihrer Anzahl begrenzt sind und darüber hinaus bei hohen Formiertemperaturen ein Anstieg der Eigenleitfähigkeit des Werkstoffes zu erwarten ist, können bereits während

der Formierphase Ladungsträgerbewegungen oder thermisch aktivierte Beteiligungen an Leitungsvorgängen auftreten, die dann nicht mehr im Rahmen der eigentlichen TSD-Strommessung erfasst werden. Die beobachteten Effekte zeigen das für teilkristalline Polymere verbreitete Verhalten verteilter Relaxationsmechanismen [Turnhout1980]. Für die in dieser Arbeit durchgeführten

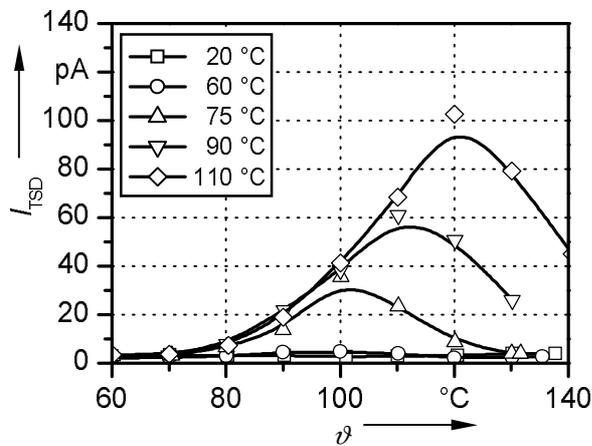


Bild 3.18: Stromverläufe I_{TSD} von VPE-isolierten Modellkabelproben in Abhängigkeit von der Messdauer t mit der Formiertemperatur als Parameter

TSD-Untersuchungen an vollständigen VPE-isolierten Modellkabelproben erweist sich somit eine Formiertemperatur von 90 °C als geeignet, da sie eine gut auswertbare Signalintensität erzeugt und inhärente Versuchsfehler ausschließt, wie sie z. B. durch Morphologieveränderungen aufgrund von höheren Formiertemperaturen erzeugt werden können.

Da die Besetzungswahrscheinlichkeit von „traps“ während der Formierphase auch mit der Dauer der elektrischen Feldbeanspruchung zunimmt, ist vor dem Hintergrund des Sachverhalts, dass die Anzahl der zu besetzenden „traps“ im Isolierstoffvolumen begrenzt ist und somit Sättigungserscheinungen zu erwarten sind, eine zeitliche Begrenzung vorzusehen, die einen rationellen Versuchsablauf ermöglicht

und das TSD-Stromspektrum in einer für die Auswertung hinreichenden Intensität erzeugt. Aufgrund der Tatsache, dass im Vergleich zu isothermen Depolarisationsstrommessungen ein ähnlicher elektrischer Energieeintrag während der Formierphase in das Probenvolumen angestrebt wird, wurde eine Dauer von insgesamt 30 min für die Gleichfeldformierung festgelegt.

3.3.2.3 Auswertung und Ergebnisdarstellung

Die Darstellung der TSD-Messungen in Form von Strom-Temperatur-Kurven repräsentiert aufgrund der durch die zeitlineare Probenerwärmung bedingten Proportionalität zugleich eine Abbildung mittels Strom-Zeit-Graphen. Damit stellen die Flächen unterhalb der TSD-Hüllkurve ein Vergleichsmaß für die aus der Probe freigesetzte Ladungsmenge dar. Dabei ist jedoch zu berücksichtigen, dass gegebenenfalls nicht alle Entladevorgänge vollständig zum extern messbaren Strom beitragen. Für Vergleichsuntersuchungen an Proben unterschiedlichen Zustandes ist daher zwingend auf gleiche Versuchsparameter zu achten.

Eine Approximation der erhaltenen Stromverläufe $I_{\text{TSD}}(\vartheta)$ erfolgte unter Verwendung von

$$I_{\text{TSD}}(\vartheta) = I_0 + \left[\left(\frac{A}{w \sqrt{\pi/2}} \right) \cdot \exp \left(-2 \left((\vartheta - \vartheta_{\text{max.}}) / w \right)^2 \right) \right] \quad (3.5)$$

- mit I_0 : Offset
 A : Fläche unterhalb des Strommaximums
 w : Breite von A bei $0,5 \cdot \vartheta_{\text{max.}}$
 $\vartheta_{\text{max.}}$: Temperaturwert der maximalen TSD-Stromintensität.

Nach erreichter Konvergenz der Messdaten wurde hinsichtlich das Ladungsspeichungsverhalten heterogener Polymere charakterisierender Kenngrößen eine weitere Datenauswertung vorgenommen. Dazu wurden zunächst zwei Wertepaare $((T_{\max.}; I_{\max.}), (T_i; I_i))$ mit $I_{\max.}/I_i = 2$ verwendet, die prinzipiell die ursprüngliche maximale Signalintensität sowie die Verbreiterung auftretender Bereiche maximaler TSD-Stromintensität charakterisieren. Basierend auf einer generellen Beschreibung trennbarer Relaxationsprozesse [Vanderschueren1979] erfolgt mit Hilfe von

$$W_A = (k \cdot \ln(I_{\max.}/I_i)) / (1/T_i - 1/T_{\max.}) \quad (3.6)$$

mit k	: Boltzmann-Konstante
$I_{\max.}$: Stromwert der maximalen TSD-Stromintensität
I_i	: Stromwert, für den gilt: $I_i = 0,5 \cdot I_{\max.}$
$T_{\max.}$: Temperaturwert der maximalen TSD-Stromintensität
T_i	: dem Stromwert I_i zugehöriger Temperaturwert

die Bestimmung der Aktivierungsenergie W_A . In heterogenen Materialien liegen in der Regel verteilte Relaxationsprozesse vor, die sich oftmals überlagern und zu einem verbreiterten TSD-Peak führen können. Mit Hilfe verschiedener experimenteller Techniken wie „thermal sampling“ oder „fractional polarization“ existieren Möglichkeiten, einzelne Relaxationsmechanismen zu separieren und deren charakteristische Größen zu ermitteln. Jedoch steigt bei diesen Methoden der zeitliche Messaufwand beträchtlich an. Darüber hinaus ist bei Polymerproben mit größerer Wandstärke infolge des in der Probe vorliegenden Temperaturgradienten nur ein begrenztes Separationspotenzial einzelner TSD-Peaks gegeben. Somit ist der entsprechend Gleichung 3.6 berechnete Kennwert W_A als integrale Kenngröße zu betrachten, die eine durchschnittliche Angabe hinsichtlich der energetischen Tiefen von an thermisch stimulierten Depolarisationsvorgängen beteiligten Ladungsträgern ermöglicht.

3.4 Dielektrische Spektroskopie im Frequenzbereich

Bei Frequenzen unterhalb von ca. 100 MHz können Dielektrika als komplexe elektrische Impedanzen $\underline{Z}(\omega)$ dargestellt werden, wobei deren konzentrierte Elemente durch elektrische Widerstände und verlustbehaftete Kapazitäten repräsentiert werden. Die dielektrische Spektroskopie stellt somit eine Form der Impedanzspektroskopie dar. Dabei erfolgt in einem dynamischen Messprozess eine diskret frequenzmodulierte Systemanregung und deren anschließender Vergleich mit der registrierten Systemantwort. Es ergibt sich damit allgemein eine frequenzabhängige komplexe Systemübertragungsfunktion. Für praktische Anwendungen in einem Frequenzbereich von 1 μ Hz bis etwa 1 MHz haben sich zwei Verfahren etabliert. So kann die Bestimmung der komplexen Impedanz einerseits durch Anwendung der Korrelationsanalyse nach Fourier erfolgen, indem die Anregungswechselspannung mit der durch einen Strom-Spannungswandler, der meist als breitbandiger Elektrometerverstärker mit variabler Verstärkung ausgeführt ist, erzeugten Antwortwechselspannung verglichen wird. Eine Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses ist dabei durch die Signalerfassung über mehrere Perioden möglich, wobei bei sehr niedrigen Frequenzen die Messdauer erheblich verlängert wird. Die Durchführung der Korrelationsanalyse kann sowohl mit analogen Bauteilen, wie z. B. „frequency response analyzer“ oder „lock-in amplifier“, erfolgen als auch mit numerischen Verarbeitungsverfahren digitalisierter Signale durch digitale Signalprozessoren vorgenommen werden. Die Verwendung von

Strom-Spannungs-Wandlern ist insbesondere für dielektrische Spektroskopien an Materialien mit geringer Gleichstromleitfähigkeit und niedrigen dielektrischen Verlusten aufgrund der hohen Genauigkeit geeignet. Andererseits kann die komplexe Impedanz auch durch den Abgleich einer Wechselspannungs-Impedanzbrücke ermittelt werden. Allerdings treten hier bei sehr niedrigen Frequenzen oftmals Messstörungen infolge von piezoelektrischen Effekten durch Deformationen der verwendeten Anschlusskabel auf, so dass stattdessen spezielle Messapparaturen mit integrierten Analysatoren verwendet werden müssen. Diese Methode bietet sich bei der Untersuchung von Dielektrika mit hoher Gleichstromleitfähigkeit und hohen dielektrischen Verlusten infolge des vorwiegend ohmschen Verhaltens an [Schaumburg1994, Kremer2003].

Befinden sich nun feste Isolierstoffe unter der Einwirkung eines elektrischen Wechselfeldes, so werden innerhalb der Materie dielektrische Verluste infolge von Ladungsträgertransportvorgängen, Ladungsträgerverschiebungen oder gegebenenfalls Ionisationseffekten verursacht. Durch die somit im Dielektrikum umgesetzte Verlustleistung kann eine unzulässig hohe Erwärmung und damit eventuell eine Zerstörung des Isolierstoffs hervorgerufen werden. Daher sind Kenntnisse hinsichtlich der dielektrischen Verluste eines Isoliermaterials in Bezug auf dessen Verwendungszweck von erheblicher Bedeutung. Das dielektrische Verlustverhalten fester Isolierstoffe kann durch die experimentelle Bestimmung des dielektrischen Verlustfaktors $\tan \delta$ und der Permittivitätszahl ϵ_r ermittelt werden, wobei in der Vergangenheit Abhängigkeiten dieser Materialkenngrößen von z. B. der Frequenz und Feldstärke der elektrischen Beanspruchung, der Temperatur sowie des Feuchtegehaltes festgestellt wurden [Beyer1986]. Formal gilt für den als integrale Größe zu messenden dielektrischen Verlustfaktor $\tan \delta$ fester Isolierstoffe in einem elektrischen Wechselfeld die Beziehung

$$\tan \delta = \tan \delta_L + \tan \delta_P + \tan \delta_{TE} \quad (3.7)$$

mit $\tan \delta_L$: dielektrischer Verlustfaktor aufgrund von Trägerleitung
 $\tan \delta_P$: dielektrischer Verlustfaktor durch Polarisierungseffekte
 $\tan \delta_{TE}$: dielektrischer Verlustfaktor durch Ionisationsvorgänge.

Die durch Teilentladungen im Dielektrikum hervorgerufenen Ionisationsverluste tragen bei den hier durchgeführten Untersuchungen nicht zum Verlustverhalten bei, da die Versuche bei Spannungen unterhalb 1 kV teilentladungsfrei realisiert werden konnten. Somit resultieren die dielektrischen Verluste aus Trägerleitungsmechanismen, die von im Isolierstoff mehr oder weniger frei beweglichen Elektronen und Ionen bestimmt werden, und aus durch verschiedene Prozesse verursachten Polarisierungseffekten, deren nähere Erläuterung hier folgt.

Die Darstellung in Bild 3.19 verdeutlicht dazu eine frequenzselektive Unterteilung der Beiträge am dielektrischen Verlustfaktor aufgrund von Polarisierungsvorgängen im für die dielektrische Spektroskopie relevanten Frequenzbereich. So resultieren bei Frequenzen von etwa 100 MHz bis 1 THz Verlustanteile durch die Orientierung permanenter Dipole im elektrischen Wechselfeld. Die Dipolausrichtung (vgl. Bild 3.20) wird dabei im Wesentlichen durch Dipolmomente infolge unterschiedlicher Ladungsschwerpunkte positiver und negativer Ladungen einzelner molekularer Gruppen und deren Anordnung im Gesamtmolekül bestimmt. In festen Isolierstoffen sind Dipolorientierungen aufgrund der molekularen Materialstruktur auf wenige diskrete Rotationsbewegungen beschränkt, die von der Kristallinität und durch Wechselwirkungen mit lokal benachbarten Dipolen beeinflusst werden. Die hier durchgeführten dielektrischen

Spektroskopieuntersuchungen im Frequenzbereich erfassen allerdings dieses Spektrum nicht, zumal in dem Frequenzabschnitt eine Beschreibung des Verlustverhaltens mit den in diesem

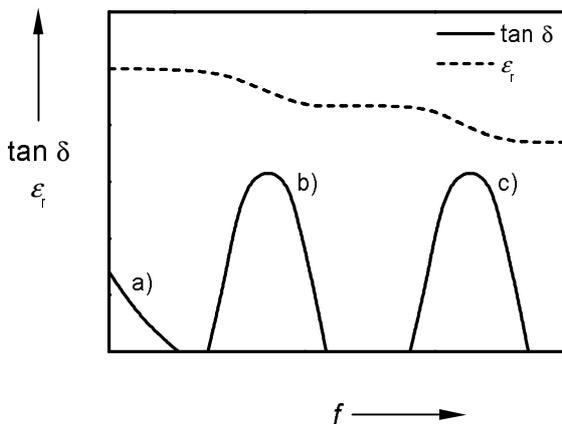


Bild 3.19: Prinzipielle Verläufe des dielektrischen Verlustfaktors $\tan \delta$ und der Permittivitätszahl ϵ_r in Abhängigkeit von der Frequenz f [Beyer1986]
 a) Ionenleitung
 b) Grenzflächenpolarisation
 c) Orientierungspolarisation

nismen bezeichnen, die das Verweilen und den Transport von Ladungsträgern in energetisch lokalisierten Zuständen beschreiben, zu den dielektrischen Verlusten bei.

Vor dem Hintergrund der allgemeinen Vorstellung einer realen Isolierung als verlustbehaftete Kapazität hat sich in der Vergangenheit infolge experimenteller Beobachtungen hinsichtlich der Frequenz- und Temperaturabhängigkeit des dielektrischen Verlustfaktors eine einfache Modellvorstellung des Dielektrikums in Form einer aus einem ohmschen Widerstand R sowie einer verlustbehafteten Kapazität C bestehenden Parallelschaltung etabliert. Entsprechend den Ausführungen in [Beyer1986, Bartnikas1987, Kahle1989, Zaengl2003a, Kao2004] kann der dielektrische Verlustfaktor nach Einführung der komplexen Permittivitätszahl

$$\underline{\epsilon}_r(\omega) = \epsilon_r'(\omega) - j \epsilon_r''(\omega) \tag{3.8}$$

- mit $\epsilon_r'(\omega)$: Realteil der komplexen Permittivitätszahl
- $\epsilon_r''(\omega)$: Imaginärteil der komplexen Permittivitätszahl
- ω : Kreisfrequenz

Unterkapitel aufgeführten Gleichungen nicht mehr zulässig ist, da eine prinzipielle Ersatzschaltung bei hohen Frequenzen nicht mit konzentrierten Elementen erstellt werden kann.

Befinden sich feste, verlustarme Isolierstoffe jedoch in einem elektrischen Wechselfeld mit Frequenzen unterhalb von ca. 1 kHz, so werden die dielektrischen Verluste vorwiegend durch Grenzflächenpolarisationen hervorgerufen. Dabei trennen prozessrelevante Grenzflächen Gebiete unterschiedlicher Permittivitätszahlen und verschiedener Leitfähigkeiten, die in teilkristallinem VPE zwischen amorphen und kristallinen Domänen oder an von Antioxidanten oder Vernetzerspaltprodukten herührenden Fremdmolekülen vorhanden sind. Darüber hinaus tragen auch makroskopische Grenzflächenpolarisationen, die bei festen Isolierstoffen geringer Leitfähigkeit Mechanismen bezeichnen, die das Verweilen und den Transport von Ladungsträgern in energetisch lokalisierten Zuständen beschreiben, zu den dielektrischen Verlusten bei.

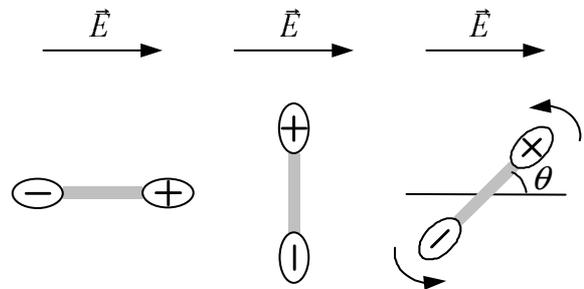


Bild 3.20: Mögliche Dipolorientierungen unter Einfluss eines elektrischen Feldes [Kao2004]
 \vec{E} : elektrische Feldstärke
 θ : Orientierungswinkel

durch die nachfolgend angeführten, formalen Beziehungen als frequenzabhängige Größe angegeben werden, die mit Hilfe dielektrischer Spektroskopien im Frequenzbereich ermittelt und zur Zustandsbewertung des untersuchten Isoliersystems herangezogen werden kann.

Die Beaufschlagung eines Dielektrikums mit einem harmonischen, elektrischen Wechselfeld $E(t)$ verursacht eine Materialpolarisation $P(t)$. Unter Anwendung der Fourier-Transformation sowie der Annahme, dass der untersuchte Werkstoff linear, homogen und isotrop ist, lassen sich $\underline{P}(\omega)$ und $\underline{E}(\omega)$ nach folgendem Zusammenhang ermitteln:

$$\underline{P}(\omega) = \varepsilon_0 \underline{\chi}(\omega) \underline{E}(\omega) \quad (3.9)$$

mit ε_0 : Permittivität des Vakuums
 $\underline{\chi}(\omega)$: komplexe Suszeptibilität.

Die komplexe Suszeptibilität wird im Frequenzbereich durch den Ausdruck

$$\underline{\chi}(\omega) = \chi'(\omega) - j \chi''(\omega) \quad (3.10)$$

mit $\chi'(\omega)$: Realteil der komplexen Suszeptibilität
 $\chi''(\omega)$: Imaginärteil der komplexen Suszeptibilität

beschrieben. Dabei stellt $\chi'(\omega)$ die Kapazität des Dielektrikums dar, und $\chi''(\omega)$ repräsentiert dessen dielektrische Verluste. In Gegenwart eines anregenden, elektrischen Wechselfeldes $\underline{E}(\omega)$ stellt sich im beanspruchten Dielektrikum eine Stromdichte $\underline{S}(\omega)$ gemäß

$$\underline{S}(\omega) = [\kappa_\infty + \varepsilon_0 \omega \chi''(\omega) + j \varepsilon_0 \omega (1 + \chi'(\omega))] \underline{E}(\omega) \quad (3.11)$$

mit κ_∞ : stationäre Komponente der spezifischen Gleichstromleitfähigkeit

ein. Aus Gleichung 3.11 ist ersichtlich, dass $\chi'(\omega)$ im Imaginärteil von $\underline{S}(\omega)$ enthalten ist und somit nicht zu den Wirkverlusten beiträgt. $\chi''(\omega)$ hingegen charakterisiert den Realteil von $\underline{S}(\omega)$ und beeinflusst daher wesentlich das frequenzabhängige Verlustverhalten. In realen Isoliersystemen ist darüber hinaus auch ein Verlustanteil aufgrund der stationären Komponente der spezifischen Gleichstromleitfähigkeit enthalten. Eine Messung im Frequenzbereich kann die Anteile aus Leitfähigkeitsverlusten und dielektrischen Verlusten nicht voneinander trennen. Daher ist die messtechnisch ermittelte komplexe Permittivitätszahl $\underline{\varepsilon}_r^*$ nicht identisch mit der gemäß Gleichung 3.8 definierten Größe. Mit Hilfe des Zusammenhanges zwischen Permittivitätszahl und komplexer Suszeptibilität

$$\underline{\varepsilon}_r(\omega) = \varepsilon_r'(\omega) - j \varepsilon_r''(\omega) = (1 + \chi'(\omega)) - j \chi''(\omega) \quad (3.12)$$

ergibt sich somit

$$\underline{S}(\omega) = [\kappa_\infty + \omega \varepsilon_0 \varepsilon_r''(\omega) + j \omega \varepsilon_0 \varepsilon_r'(\omega)] \underline{E}(\omega).$$

Für den dielektrischen Verlustfaktor $\tan \delta$ lässt sich daher abschließend folgende analytische Beziehung angeben, die definitionsgemäß dem Verhältnis zwischen der im Dielektrikum umgesetzten Wirk- und Blindleistung entspricht:

$$\tan \delta = \left(\kappa_{\infty} / \omega \varepsilon_0 \varepsilon_r'(\omega) \right) + \left(\varepsilon_r''(\omega) / \varepsilon_r'(\omega) \right) \quad (3.13)$$

Die integrale Messgröße $\tan \delta$ weist zwei sich überlagernde Anteile auf, wobei der Beitrag infolge von Leitfähigkeitseffekten bei den durchgeführten Messungen aufgrund des bei VPE hohen spezifischen Widerstandes von mindestens $10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ bei einer Temperatur von 20°C sowie der geringen, an die Probe angelegten elektrischen Feldstärke erst im Bereich sehr kleiner Frequenzen feststellbar ist. Gegebenenfalls tragen auch höhere Gleichstromleitfähigkeiten, die durch alterungsbedingte Materialveränderungen hervorgerufen werden können, zum dielektrischen Verlustfaktor bei. In der Praxis wird dieser Beitrag am dielektrischen Verlustfaktor daher bei Niederfeldmessungen an verlustarmen Dielektrika unter Umgebungsbedingungen oft vernachlässigt. Allerdings können die Leitungsverluste insbesondere bei hohen Temperaturen sowie erheblichen elektrischen Feldstärken deutlich ansteigen und die durch Polarisierungseffekte hervorgerufenen Verlustanteile überlagern (vgl. Bild 3.19). Einzelne Relaxationspeaks sind dann einer entsprechenden Darstellung des Verlustfaktors in Abhängigkeit von der Frequenz nicht mehr zu entnehmen. Jedoch weist insbesondere bei weitgehend unpolaren festen Isolierstoffen der dielektrische Verlustfaktor eine gewisse Zeitabhängigkeit auf, aufgrund derer eine temperaturbedingte Zunahme der Verluste reversibel ist. Als Ursache für diesen Effekt wird eine diffusionsbedingte Abwanderung zusätzlicher Ladungsträger aus dem Isolierstoffvolumen angesehen [Beyer1986, Kahle1989].

Die für die Auswertung frequenzabhängiger $\tan \delta$ -Verläufe erforderlichen Kenngrößen $\varepsilon_r'(\omega)$ und $\varepsilon_r''(\omega)$ repräsentieren im Bereich der breitbandigen dielektrischen Spektroskopie (BDS) die für eine Analyse dielektrischer Spektren notwendigen Parameter. Insbesondere deren frequenzabhängige Darstellung eignet sich zur Untersuchung von Relaxationsphänomenen. Da bei polymeren Isolierstoffen die Permittivitätszahl wesentlich von der Molekularstruktur beeinflusst wird, sind insbesondere Kenntnisse hinsichtlich des Kristallisationsgrades und dessen beanspruchungsabhängiger Veränderung von Bedeutung. Aus dielektrischen Spektren lässt sich daher prinzipiell eine Zuordnung zwischen Relaxationseffekten und deren Ursachen auf molekularer Ebene finden, wobei

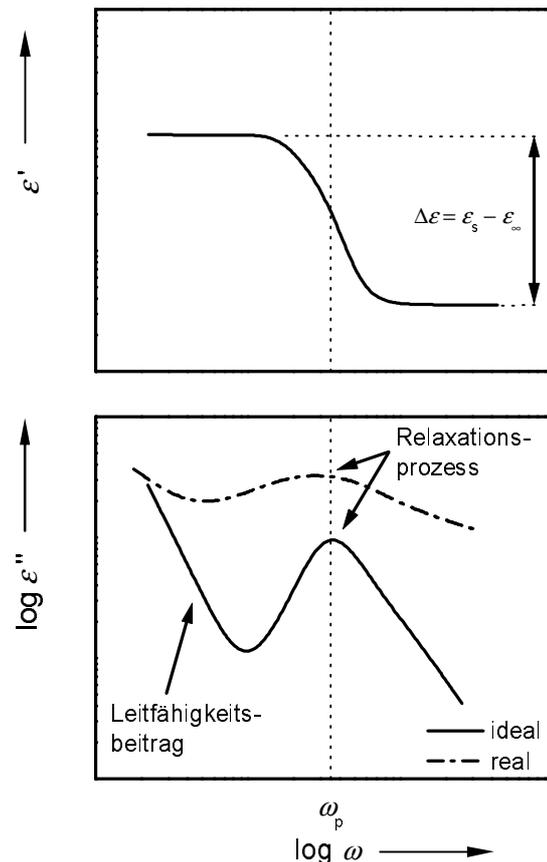


Bild 3.21: Schematische Darstellung des Real- und Imaginärteils ε' und ε'' der komplexen Permittivität $\underline{\varepsilon} = \varepsilon_0 \cdot \underline{\varepsilon}_r$ in Abhängigkeit von der Kreisfrequenz ω

speziell bei teilkristallinen Kunststoffen Schwierigkeiten bezüglich der Separation einzelner Relaxationserscheinungen infolge von Überlagerungsvorgängen vorliegen.

Bild 3.21 veranschaulicht vor diesem Hintergrund ein prinzipielles dielektrisches Spektrum, das schematisiert einen realen und einen idealen Relaxationsprozess unterscheidet. Der mit einem charakteristischen Maximum der ϵ'' -Darstellung korrespondierende Abfall von ϵ' wird als dielektrische Anisotropie oder anomale Dispersion bezeichnet. Dabei stellen ϵ_∞ den Realteil der komplexen Permittivität bei sehr hohen Frequenzen und ϵ_s den Realteil der komplexen Permittivität bei sehr niedrigen Frequenzen dar. Darüber hinaus ist dem ϵ'' -Verlauf zu entnehmen, dass im Bereich sehr kleiner Frequenzen ein sich den dielektrischen Verlusten bemerkbar überlagernder Verlustanteil aufgrund von Leitfähigkeitseffekten auftritt.

Die mit dielektrischen Relaxationsphänomenen verbundenen molekularen Fluktuation innerhalb von Polymeren sowie molekulare Vorgänge, wie z. B. Ausrichtungen oder Verschiebungen, führen prinzipiell zu dielektrischen Spektren aufgrund einer in Modifikationen prozessrelevanter Aktivierungsenergien resultierenden Verteilung von unterschiedlichen räumlichen Anordnungen. Daher sind Materialveränderungen, die die molekulare Struktur beeinflussen, mit dielektrischer Spektroskopie untersuchbar [Kremer2003]. In teilkristallinen Materialien werden Relaxationserscheinungen deshalb vorwiegend durch Eigenschaften von amorphen und kristallinen Phasen charakterisiert. Dabei werden Relaxationen in kristallinen Bereichen durch deren Immobilität stark behindert. Untersuchungen der dielektrischen Anisotropie in Abhängigkeit des Kristallinitätsgrades haben gezeigt, dass gegebenenfalls eine Erweiterung der Modellvorstellung teilkristalliner Makromoleküle als Zweiphasenstruktur notwendig ist, um eine Differenzierung des dielektrischen Relaxationsverhaltens in amorphen Bereichen zu ermöglichen. Es wird vorgeschlagen, zwischen amorphen und starren bzw. steifen amorphen Zonen zu unterscheiden, da innerhalb starrer Domänen restriktive molekulare Mobilitäten vermutet werden [Kremer2003].

3.4.1 Versuchsaufbau- und durchführung

Die dielektrischen Spektroskopien an vollständigen, unterschiedlich gealterten VPE-Modellkabeln im Frequenzbereich wurden in Form von Impedanzmessungen bei verschiedenen

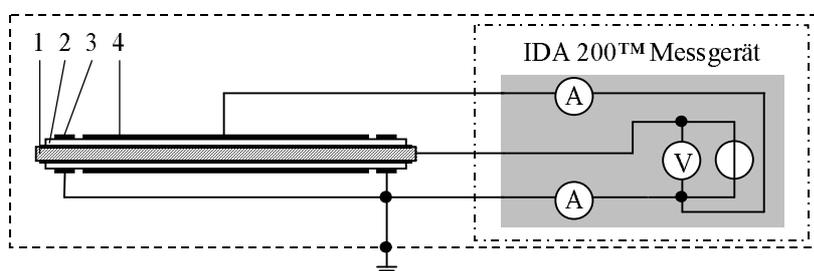


Bild 3.22: Messanordnung zur Bestimmung des dielektrischen Verlustfaktors und der Permittivitätszahl von Kabeln in Abhängigkeit von der Frequenz

- 1 Innenleiter bzw. innere Leitschicht (Spannungselektrode)
- 2 VPE-Isolierung
- 3 Schutzring
- 4 äußere Leitschicht (Messelektrode)

Frequenzen der beaufschlagten Spannung mit dem Messgerät „Insulation Diagnostic System IDA 200™“ der Firma *Programma Electric AB* durchgeführt. Dabei erfolgte die Anregung der Proben mit einer Wechselspannung von 140 V bei diskreten Frequenzen zwischen 1 mHz und 1 kHz unter Umgebungsbedingungen mit Raumtemperaturen im Bereich von 19 °C bis 21 °C. Die untersuchten VPE-isolierten Modellkabel wurden in Anlehnung an die Norm VDE 0472-

505 präpariert, wobei die Kabelvorbereitung auf einer Probenlänge von 1,5 m erfolgte, und an den beiden Enden eine ca. 1 mm breite Nut in die äußere Leitschicht zur Vermeidung von eventuell auftretenden parasitären Oberflächenströmen eingebracht wurde. Die als Messverbindung genutzte Anschlussmöglichkeit über die metallenen Schirmdrähte der Kabel erlaubte über den Messbelag der äußeren Leitschicht die Kontaktierung an die Probe. Zur Verdeutlichung des Prüfaufbaus dient die Darstellung in Bild 3.22. Ein zusätzliches Kurzschließen der äußeren Leitschicht in axialer Richtung, z. B. durch eine enge Metallbandumwicklung zur Vermeidung von partiell unterschiedlichen Leitfähigkeitsbereichen aufgrund der halbleitenden Grundstruktur der Leitschichtmaterialien, erfolgte hier nicht. In [Steingraber1992] wurde dieser Effekt an einem vergleichbaren Aufbau untersucht und bei Messungen im Raumtemperaturbereich kein negativer Einfluss beim Anschluss ohne eine zusätzliche Metallbandumwicklung festgestellt.

3.4.2 Auswertung und Ergebnisdarstellung

Die Auswertung und Ergebnisdarstellung der ermittelten Messdaten wurde von dem verwendeten Messgerät vollständig durchgeführt und in Form von exportierbaren ASCII-Daten zur Verfügung gestellt. Entsprechend den Angaben in [Programma2002] erfolgte auf der Basis einer dielektrischen Probenmodellierung die Bestimmung der komplexen Permittivitätszahl $\underline{\varepsilon}_r$, der Prüflingskapazität C_P sowie des dielektrischen Verlustfaktors $\tan \delta$ gemäß den nachfolgenden Beziehungen:

$$C_P = \operatorname{Re} \left\{ (1/j \omega) \cdot (\underline{I}_P / \underline{U}_P) \right\} \quad (3.14)$$

mit \underline{I}_P : Prüflingsstrom
 \underline{U}_P : Prüflingsspannung

$$\underline{\varepsilon}_r(\omega) = \varepsilon_r'(\omega) - j \varepsilon_r''(\omega) = (1/j \omega C_0) / (\underline{I}_P / \underline{U}_P) \quad (3.15)$$

mit C_0 : geometrische Kapazität

$$\tan \delta = (\varepsilon_r''(\omega) / \varepsilon_r'(\omega)). \quad (3.16)$$

Eine weitere Datenauswertung wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt.

3.5 Physikalische Analyse von VPE

Physikalische Analysen werden allgemein zur Charakterisierung von Stoffen aufgrund ihrer physikalischen Eigenschaften durchgeführt. Die Stoffbestimmung kann beispielsweise durch Messungen von Dichte, Schmelzpunkt, Siedepunkt, Dampfdruck, Grenzflächenspannung, Viskosität (Viskosimetrie) oder Brechungsindex (Refraktometrie) erfolgen. Zu deren Durchführung werden Verfahren der instrumentellen Analyse herangezogen. Im folgenden Abschnitt werden die im Rahmen dieser Arbeit angewandten analytischen Verfahren beschrieben sowie die Aufbereitung der dabei ermittelten Ergebnisse vorgestellt.

3.5.1 Magnetische Kernresonanz (NMR)

Auf dem Gebiet der magnetischen Kernresonanz („nuclear magnetic resonance (NMR)“) ist zwischen verschiedenen Anwendungsgebieten zu unterscheiden. Die NMR-Spektroskopie dient dabei einerseits vornehmlich zur grundlegenden Strukturauflösung chemischer Verbindungen sowie zur qualitativen und quantitativen Beschreibung molekularer Vorgänge von Flüssigkeiten. Andererseits wird in Form von ein- und mehrdimensionaler Festkörperspektroskopie der Zugang zu strukturellen Informationen bei Stoffen mit im Vergleich zu Flüssigkeiten verminderter molekularer Beweglichkeit ermöglicht. Durch die Weiterentwicklung der Methoden können heutzutage auch feste Stoffe selektiv hinsichtlich ihrer Struktur, Dynamik und Phasenseparation charakterisiert werden [Spiess1999]. Darüber hinaus findet die NMR-Bildgebung im medizinischen Bereich und in der Materialforschung weite Verwendung, wobei hier die Entwicklung schnellerer Messverfahren sowie die Verbesserung des Bildkontrastes und der Strukturkorrelation im Vordergrund aktueller Forschungen stehen [Eymael2001].

Für die Anwendung der NMR ist dabei wesentlich, dass viele stabile Kernisotope magnetische Dipolmomente besitzen, die in einem starken Magnetfeld Präzessionsbewegungen ausführen. Die dazugehörigen Präzessionsfrequenzen sind prinzipiell elementspezifisch. Sie werden prak-

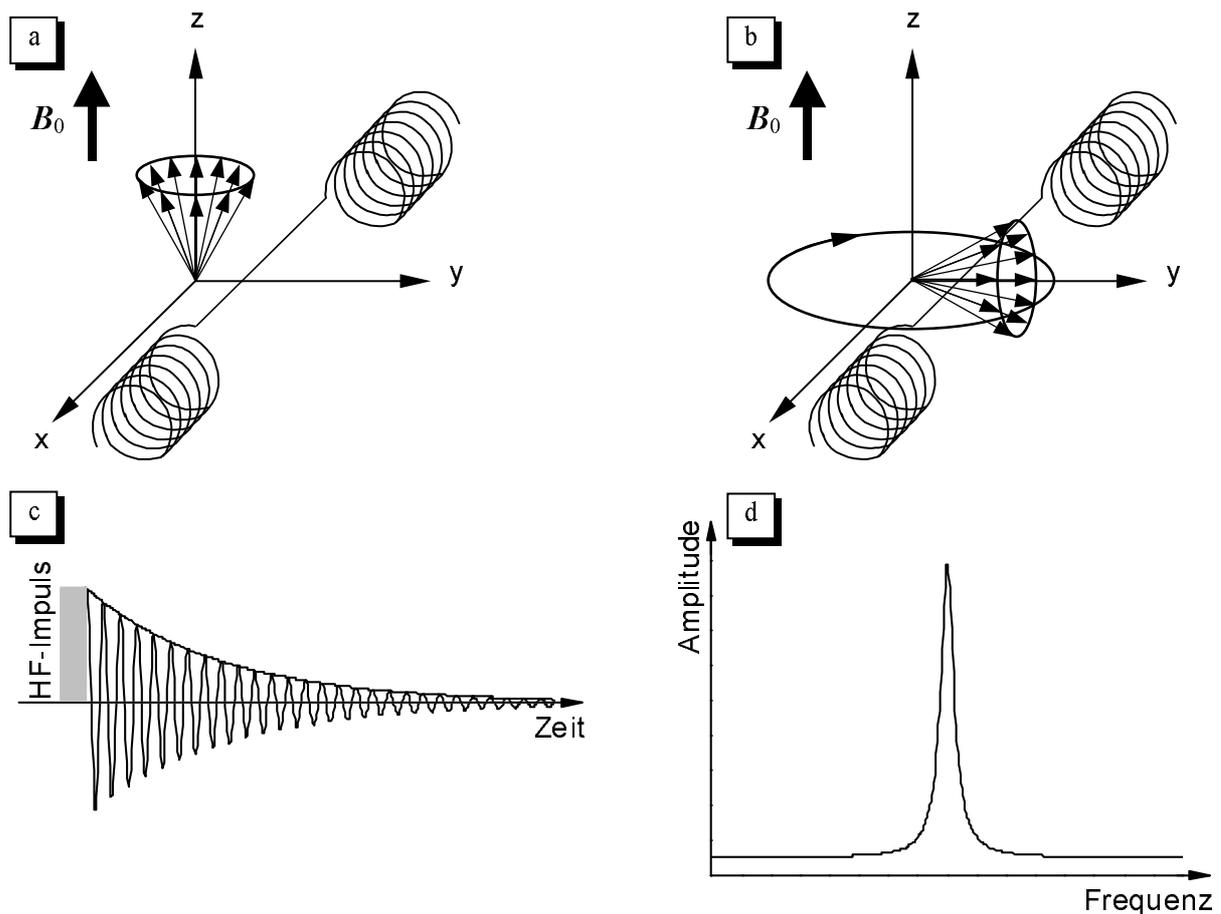


Bild 3.23: Prinzip der Fourier-Transform NMR-Spektroskopie [Spiess1999]

- Kernmagnetisierung
- Anregung durch HF-Impuls
- freier Induktionsabfall („free induction decay (FID)“)
- NMR-Spektrum nach Fourier-Transformation

tisch aber durch Zusatzbereiche beeinflusst, die spezifisch für die chemische Umgebung des registrierten Kernspins, den Ordnungszustand sowie den Aggregatzustand des untersuchten Materials sind. Für die Untersuchung von Polymeren mit der NMR besitzen die Kerne Proton ^1H , Deuteron ^2H sowie das Kohlenstoffisotop ^{13}C die größte Bedeutung [Blümich1995]. Somit kann das aus Kohlenstoff- und Wasserstoffatomen gebildete Kettengerüst von Makromolekülen entsprechend analysiert werden.

Die prinzipielle Grundlage von NMR-Experimenten stellt die Registrierung des NMR-Spektrums nach Anregung durch Hochfrequenz (HF)-Impulse mit anschließender Fourier-Transformation dar, wie es in Bild 3.23 skizziert ist. Durch Einbringen einer Probe in ein starkes statisches Polarisationsmagnetfeld B_0 baut sich zunächst eine Kernmagnetisierung auf, die sich im thermodynamischen Gleichgewicht parallel zur Orientierung von B_0 in Ruhelage befindet. Nach Auslenkung der Kernmagnetisierung durch Einstrahlung eines HF-Magnetfeldes B_1 in Impulsform präzediert die Magnetisierung um das Magnetfeld mit der charakteristischen Larmorfrequenz. Dadurch wird in einer Empfangsspule, die bezüglich der untersuchten Probe in verschiedenen geometrischen Positionen gegenüber der Kernmagnetisierung platziert sein kann, ein transientes Signal induziert, das anschließend mit Hilfe der Fourier-Transformation in ein entsprechendes frequenzabhängiges NMR-Spektrum umgewandelt wird. Die Kernmagnetisierung der Probe erfordert molekulare Dynamik, so dass diesbezüglich schon eine erste Selektion des untersuchten Stoffes erfolgen kann. Analog findet der erfasste Signalzerfall je nach Struktur und Dynamik des Materials unterschiedlich schnell statt. Eine Selektivitätssteigerung ist zu diesem Zeitpunkt des Experiments bereits erreicht [Blümich1995, Spiess1999].

Das Verhalten der Kernspins des untersuchten Materials wird von internen anisotropen Wechselwirkungen beeinflusst, wobei insbesondere bei Festkörper-NMR-Versuchen Dipol-Dipol-Kopplungen und Quadrupolkopplungen der ^1H -Kerne zu Linienverbreiterungen des charakteristischen NMR-Spektrums führen. Das Spektrum stellt dabei eine Antwort auf einen HF-Impuls in Form einer homogen verbreiterten Linie dar. Im Fall von inhomogen verbreiterten Linien repräsentiert die Impulsantwort eine Überlagerung vieler homogener Signale unterschiedlicher Frequenz. Das entsprechende Summensignal klingt infolge von Interferenzen wesentlich schneller ab als der separate Beitrag einzelner Signalkomponenten. Dadurch erscheint das resultierende Linienspektrum deutlich verbreitert. Das Summensignal kann allerdings als Spin-Echo zurückgewonnen werden, womit formal eine Umkehrung des zeitlichen Bezugs verbunden ist. Die Nutzung von Echos ist in der NMR-Bildgebung vorteilhaft, da infolge einer Trennung zwischen Anregung und Signalempfang gerätespezifische Totzeiten der Empfängereinheit eliminiert werden können. Spektrale Aufweitungen sind mit einer Abnahme der räumlichen Auflösung verbunden und können durch geeignete Messtechniken eliminiert oder deutlich reduziert werden, so dass möglichst schmale und charakteristische Spektrallinien generiert und anschließend entsprechend informativer ausgewertet werden können. Ein adäquates Verfahren dafür ist beispielsweise die Anregung der magnetisierten Probe mit Impulssequenzen, wobei die wiederholte Einstrahlung von HF-Feldern üblicherweise speziell aufeinander abgestimmt ist. Die wiederholte Refokussierung der Magnetisierung in Form von Echos kann einerseits durch HF-Impulssequenzen im Spinraum und andererseits durch mechanische Probenrotation im Ortsraum herbeigeführt werden [Spiess1999, Blümich2000]. Bezüglich der verschiedenen Techniken der Impulsanregung und der damit verbundenen Nutzung von Spin-Echos soll an dieser Stelle auf weiterführende Literatur wie z. B. [Blümich2000] und die darin enthaltenen Literaturangaben verwiesen werden.

Im Bereich der NMR-Spektroskopie wird ein möglichst homogenes statisches Polarisationsmagnetfeld benötigt, um Aufweitungen der Spektrallinien und die damit verbundene geringere räumliche Auflösung zu vermeiden. Dazu ist ein hoher konstruktiver Aufwand erforderlich, wobei trotz spezieller Konstruktionen der HF- und Empfangsspulen nur eine beschränkte Variabilität in der Größe der untersuchten Objekte möglich ist, da die zur Anregung mit HF-Impulsen benötigte Leistung überproportional mit der Probengröße ansteigt. Hinsichtlich der erforderlichen räumlichen Auflösung sowie ortsselektiver Messungen ist die NMR-Bildgebung hingegen auf inhomogene Polarisationsfelder angewiesen, da in diesem Fall das Magnetfeld eine lineare räumliche Abhängigkeit aufweist. In der Praxis wird diese Vorgabe durch Gradientenspulen umgesetzt, die einen konstanten magnetischen Feldgradienten erzeugen, wobei der Schwerpunkt auf der Erzeugung einer initialen Magnetisierung an einer gewünschten Position des Probenvolumens liegt. Durch die bereits beschriebene Verwendung von geeigneten Impulssequenzen können dann auch in inhomogenen Polarisationsfeldern schmale Spektrallinien detektiert und ausgewertet werden [Blümmler1994].

Neben der Nutzung von Feldgradienten zur selektiven Initialisierung der Kernmagnetisierung hinsichtlich einer orts aufgelösten Bildgebung können die gewünschten raumabhängigen Informationen auch durch den Einsatz von Oberflächenspulen zugänglich gemacht werden. Hierbei wird durch die Formgebung der anregenden Transmittersolenoiden sowie der Empfangsspulen das aktivierbare Probenvolumen gezielt definiert. Somit sind die erhaltenen Signalintensitäten und -frequenzen volumenelementspezifisch. Da die Spulendurchmesser im Vergleich zu den Objektdimensionen üblicherweise klein sind, können im Wesentlichen oberflächennahe Volumenbereiche untersucht werden. Durch ein spezielles Spulendesign sind aber auch NMR-Messungen in oberflächenentfernteren Domänen möglich [Blümich2000]. Oberflächenspulen können als separate Sende- und Empfangsspulen oder als kombinierte Einheiten zur Anregung und Signaldetektion konstruiert sein. Im letzteren Fall stellt sich die höchste Effektivität hinsichtlich der Messintensität ein, wenn die Spulenachse senkrecht zur Orientierung von B_0 positioniert ist, da dann eine überproportionale Abhängigkeit der Signalamplitude in Bezug auf die räumliche Dependenz von B_1 vorliegt [Blümmler1994].

Die Verbindung von kombinierten Oberflächenspulen und entgegengesetzt orientierten Permanentmagneten, deren Pole über ein Eisenjoch verbunden sind, ermöglicht den Einsatz kompakter und mobiler NMR-Geräte, die eine unilaterale Kernmagnetisierung und Signaldetektion zur Untersuchung molekularer Mobilität innerhalb polymerer Werkstoffe applizieren [Blümich2000]. Molekulare Mobilität kann auf vielfältige Weise in Polymeren durch die Analyse verschiedener NMR-Parameter untersucht werden. Dazu eignen sich z. B. Relaxationszeiten, Spindichten, spektrale Signalintensitäten oder Linienformen des NMR-Spektrums. Im Bereich der Materialforschung ist diesbezüglich eine Rekalibrierung mit makroskopischen Materialparametern erforderlich, um einen Einsatz der NMR-Bildgebung in der Prozesskontrolle oder der Qualitätsprüfung zu ermöglichen [Blümmler1994].

Im weiteren Verlauf dieses Kapitels stehen Untersuchungen der molekularen Beweglichkeit von VPE in Form von Relaxationsvorgängen im Vordergrund. Dabei sind einerseits longitudinale Relaxationen möglich, die die Rückkehr eines Kernspins in seinen thermodynamischen Gleichgewichtszustand nach einer Störung beschreiben, die durch die Einstrahlung von HF-Impulsen verursacht werden kann. Der Zeitverlauf des damit verbundenen Wiederaufbaus makroskopischer longitudinaler Magnetisierung wird durch die Zeitkonstante T_1 erfasst. Dieser Vorgang ist

charakteristisch für einen Energieaustausch, der zwischen dem Spinsystem und der umgebenden Gitterstruktur stattfindet. Andererseits repräsentieren transversale Relaxationen einen irreversiblen Phasenverlust einer Spingeesamtheit, der im Wesentlichen durch Umorientierungsvorgänge der beteiligten Kernspins innerhalb eines Energieniveaus verursacht wird. Aufgrund des Phasenverlusts wird die transversale Magnetisierung reduziert und gegebenenfalls durch Magnetfeldinhomogenitäten und Suszeptibilitätsunterschiede innerhalb des untersuchten Materials zusätzlich vermindert. Der zeitliche Verlauf der resultierenden transversalen Magnetisierung kann daher durch abklingende Exponentialfunktionen mit einer charakteristischen Zeitkonstante $T_{2, \text{eff}}$ beschrieben werden [Blümich2000, Eymael2001].

Vor diesem Hintergrund können z. B. mit einer NMR-MOUSE^{®15} („mobile universal surface explorer“) nahezu beliebig große Objekte zerstörungsfrei hinsichtlich ihres transversalen Relaxationsverhaltens in oberflächennahen Bereichen untersucht werden [Eidmann1996]. Dazu sind Techniken notwendig, die die konstruktionsbedingt vorhandenen Feldinhomogenitäten sowohl von B_0 als auch von B_1 berücksichtigen. Aufgrund der hohen magnetischen Feldgradienten sind mögliche HF-Impulse frequenzselektiv, so dass das sensitive Probenvolumen durch die Verläufe von B_0 und B_1 sowie die Anregungsbandbreite bestimmt wird. Nur die Bereiche, in denen B_0 und B_1 senkrecht zueinander stehende Komponenten aufweisen, tragen zur Anregung und Detektion eines NMR-Signals bei. So werden z. B. mit niedrigeren Larmorfrequenzen weiter von der Oberfläche der NMR-MOUSE[®] entfernte Volumenbereiche des aufliegenden Materials angeregt. Die Variation des Hochfrequenzmagnetfeldes B_1 erfolgt bei einer NMR-MOUSE[®] durch einen Resonanzschwingkreis, der aus der im Magnetspalt positionierten Zylinderspule und variablen, zumeist unterseitig des Eisenjochs eingebrachten Kondensatoren besteht. Darüber hinaus sind bisher durch optimierte Abstimmungen der Magnetspaltbreite und -länge mit der Konstruktion der Oberflächenspule Messtiefen von bis zu 10 mm nutzbar, und der Einsatz von Polschuhen zur Fokussierung erlaubt maximale Feldstärken von B_0 bis zu 0,7 T und damit ¹H-Resonanzfrequenzen von 30 MHz [Eidmann1996, Blümich2000, Eymael2001]. Weiterhin können durch Güte- und Designverbesserungen des HF-Resonanzkreises der Oberflächenspule gerätespezifische Totzeiten von unter 20 μs erreicht werden, so dass auch Messungen der transversalen Relaxation an Materialien mit sehr kleinen $T_{2, \text{eff}}$ -Zeiten möglich sind [Anferova2002].

Neben den Geometrien der Magnetfelder B_0 und B_1 , die durch den konstruktiven Aufbau des Probenkopfes bestimmt sind, wird das sensitive Volumen auch von den verwendeten Pulssequenzen festgelegt, da damit infolge der verschiedenen Entwicklung des Spinsystems durch HF-Impulse unterschiedliche räumliche Signalverteilungen erzeugt werden können und Beiträge zur transversalen Relaxation infolge von äußeren Magnetfeldinhomogenitäten oder Suszeptibilitätsunterschieden durch Spin-Echos teilweise refokussiert werden [Eidmann1996, Eymael2001].

Im Folgenden werden daher nun zwei verbreitet verwendete Echosequenzen vorgestellt, mit denen sich verschiedene Eigenschaften des Spinsystems, wie z. B. Unterschiede im transversalen Relaxationsverhalten, durch Verwendung der NMR-MOUSE[®] untersuchen lassen. Entsprechend der Darstellung in Bild 3.24 wird dabei zwischen dem *Hahn*-Echo und dessen Mehrpulsvariante nach *Carr, Purcell, Meiboom* und *Gill* (CPMG) unterschieden. In beiden Sequenzen wird zunächst durch einen 90 °-Puls die transversale Magnetisierung aufgebaut. Nach der Zeit $t_E/2$ wird durch einen 180 °-Puls doppelter Intensität die Ausbreitung des reversiblen Anteils der Phasen-

¹⁵ NMR-MOUSE[®] ist ein registriertes Warenzeichen der RWTH Aachen und von P. Blümmler sowie B. Blümich [Blümich2001].

verschiebung transversaler Magnetisierung umgekehrt und als Spin-Echo nach der Echozeit t_E detektierbar. Im Fall der *Hahn*-Sequenz wird der zeitliche Verlauf der abfallenden Signalintensität durch einfaches Inkrementieren der Echozeit registriert. Infolgedessen wird vor jeder Echoanregung eine Wartezeit zum erneuten Aufbau der Gleichgewichtsmagnetisierung benötigt, die einen nachteiligen Zeitaufwand hinsichtlich der Anregung mit *Hahn*-Echos darstellt. Im Gegensatz zum *Hahn*-Echo wird bei der CPMG-Pulssequenz der Signalzerfall durch wiederholte Refokussierung mit weiteren 180° -Pulsen nach der Zeit t_E in einem Messzyklus aufgenommen. Dadurch wird die benötigte Messdauer deutlich verkürzt. Sowohl bei der *Hahn*-Sequenz als auch beim CPMG-Echo fallen die zeitlich nacheinander gemessenen Echoamplituden exponentiell ab, wobei die Einhüllende dieses Vorganges charakteristisch für die effektive transversale Relaxationszeit $T_{2,\text{eff}}$ ist. Allerdings unterscheiden sich die mit beiden Sequenzen ermittelten effektiven transversalen Relaxationszeiten, da aufgrund der Inhomogenität der Magnetfelder bei der CPMG-Sequenz zusätzlich zu transversalen Magnetisierungsanteilen auch Anteile longitudinaler Magnetisierung den zeitlichen Verlauf des Signalzerfalls bestimmen. Daher sind die Echoamplituden nach *Hahn*-Anregung geringer im Vergleich zur CPMG-Stimulation [Eidmann1996, Eymael2001].

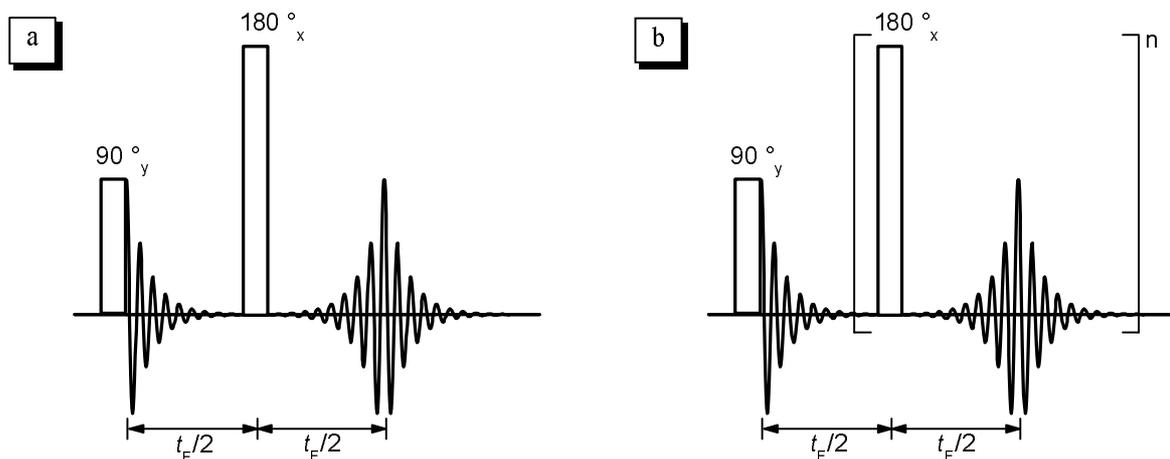


Bild 3.24: Pulssequenzen zur Bestimmung transversaler Relaxationszeiten [Eymael2001]
 a) *Hahn*-Echo
 b) CPMG-Echo

Die vorangegangenen Textabschnitte stellen einige eng umrissene Themenausschnitte aus dem Bereich der magnetischen Kernresonanz dar, die zur Veranschaulichung einiger prinzipieller Aspekte dienen. Aufgrund der Anwendung spezieller NMR-Konzepte in der Materialforschung werden in dem folgenden Unterkapitel der im Rahmen dieser Arbeit verwendete Aufbau der NMR-Versuche beschrieben und die dabei vorliegenden Besonderheiten näher erläutert.

3.5.1.1 Versuchsaufbau und -durchführung

Zur Untersuchung des transversalen Relaxationsverhaltens unterschiedlich gealterter VPE-Isolierung für Hochspannungskabel mit unilateraler magnetischer Kernresonanz wurden zunächst zweckmäßige Proben präpariert. Dazu wurden eingangs die äußeren Kabelaufbauelemente abmontiert und ein ca. 5 cm langes Probenstück extrahiert, das anschließend axial in zwei Hälften aufgetrennt wurde. Danach konnte der verbleibende Innenleiter aufgrund der geringen Probenabmessungen weitestgehend ohne zusätzliche mechanische Beanspruchung des Werkstoff-

fes, insbesondere auch bei den mit hohen Temperaturen gealterten Exemplaren, entfernt werden. Somit bestanden die untersuchten Testproben aus einem dreischichtigen Aufbau, der die innere und äußere Leitschicht sowie die VPE-Isolierung umfasste. Die Prüflinge konnten somit im Hinblick auf Materialveränderungen durch die Präparationstechnik unverändert gegenüber den Alterungsversuchen auf der Oberfläche einer NMR-MOUSE[®] positioniert werden, wie es in Bild 3.25 illustriert ist. Die Durchführung des gesamten NMR-Versuchs erfolgte bei Umgebungsbedingungen über ein computergesteuertes NMR-Spektrometer der Firma *Bruker* vom Typ *the minispec*, das die HF-Impulsanregung und die Signalverarbeitung vornahm. Die Raumtemperatur variierte während der Untersuchungen nur geringfügig zwischen 23,6 °C und 24,7 °C, und die maximal auflösbare Messtiefe der NMR-MOUSE[®]-Konstruktion betrug 3 mm.

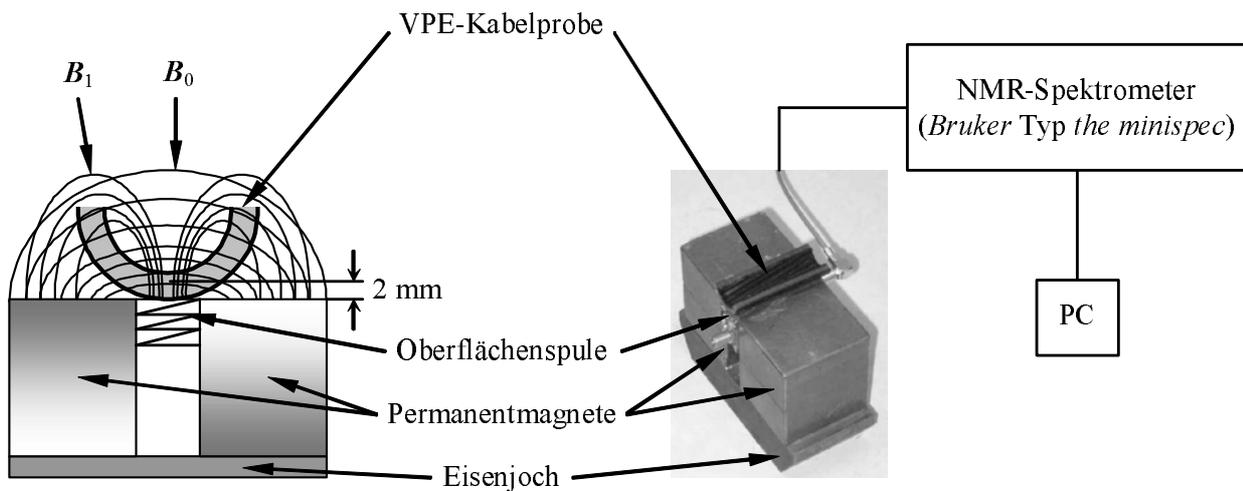


Bild 3.25: Schematischer Aufbau der NMR-Messungen mit der verwendeten NMR-MOUSE[®] sowie einer positionierten Kabelprobe im Querschnitt

Zu Beginn der NMR-Untersuchungen erfolgten einige Messreihen zur Justierung der Messparameter in Bezug auf das zu analysierende Material und dessen Geometrie. Dazu wurden zunächst zur Abstimmung der Larmorfrequenz auf die Messtiefe mit einem Referenzmaterial aus Silikon die Signalintensitäten nach Anregung mit einer *Hahn*-Pulssequenz aufgenommen. Die Probenmitte der Referenz wurde mit Hilfe von Objektträgern aus Glas ca. 2 mm oberhalb der NMR-MOUSE[®]-Oberfläche positioniert. Die Dicke der Silikonprobe betrug dabei 2 mm. Zu jeder eingestellten Larmorfrequenz wurde die Pulslänge zusätzlich zwischen 4 μ s und 7 μ s variiert. Dem linken Diagramm in Bild 3.26 ist dazu zu entnehmen, dass eine Frequenz von 20,0 MHz die vergleichsweise höchsten Signalintensitäten hervorruft. Mit Ausnahme einer Pulslänge von 4 μ s scheint es hinsichtlich der anderen untersuchten Pulslängen keinen Intensitätsunterschied zu geben. Zur feineren Auflösung wurde daher die Pulslänge bei einer festen Larmorfrequenz von 20,0 MHz zwischen 5 μ s und 6 μ s verändert.

Aus jeweils zehn Einzelmessungen ergaben sich die im rechten Diagramm in Bild 3.26 veranschaulichten Maximalintensitäten sowie die entsprechenden arithmetischen Mittelwerte und Stichproben-Standardabweichungen. Es wird deutlich, dass eine Pulslänge von 5,8 μ s im untersuchten Pulslängenausschnitt die höchste Signalamplitude verursacht. Mit einer Larmorfrequenz von 20,0 MHz sowie einer Pulslänge von 5,8 μ s konnte an der Referenzprobe aus Silikon eine

Signalintensität von ca. 60 % erzielt werden, so dass ein ausreichend gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis für eine fundierte Messung zugrunde gelegt werden konnte.

Die Einstellung des sensitiven Volumens in einer Messtiefe von etwa 2 mm wurde vor dem Hintergrund gewählt, den Bereich der VPE-Isolierung in der Nähe der inneren Leitschicht zu untersuchen, der aufgrund der Wirkungsart der eingestellten Beanspruchungsparameter die höchste Wahrscheinlichkeit von alterungsbedingten morphologischen Strukturänderungen aufweist.

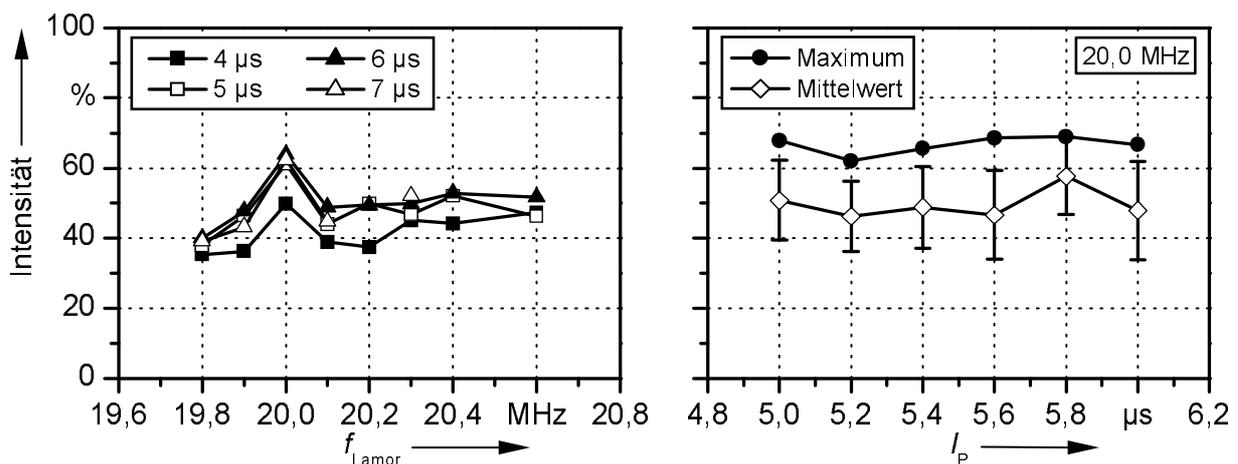


Bild 3.26: Einfluss verschiedener Lamorfrequenzen f_{Lamor} und Pulslängen l_p auf die Signalintensität nach Anregung mit *Hahn-Echo*

Aufgrund der Strukturunterschiede zwischen dem relativ weichen Elastomeren der Testprobe und dem eher harten Polymeren der zu analysierenden VPE-Muster ist mit einem Intensitätsverlust zu rechnen. Daher wurde in einem weiteren Vorversuch eine Überprüfung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses mit den bereits ermittelten Messeinstellungen an einer VPE-Probe vorgenommen. Darüber hinaus musste ausgeschlossen werden, dass die unmittelbar auf der Oberfläche der NMR-MOUSE[®] aufliegende halbleitende äußere Leitschicht der Probe eine Störung der Oberflächenspulenleiterbahnen verursacht. In Bild 3.27 sind die dazugehörigen Resultate dargestellt. Die Betrachtung der Kurvenverläufe zeigt, dass die Messung mit vollständigem dreischichtigem Probenaufbau keine feststellbare Abweichung gegenüber der Messung mit entfernter äußerer Leitschicht aufweist und ein störender Einfluss des Aufbauelements somit ausgeschlossen werden kann.

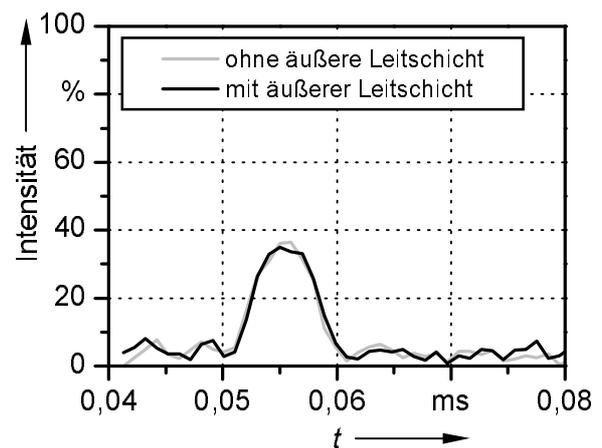


Bild 3.27: Einfluss der äußeren Leitschicht auf Signalintensitäten nach Anregung mit *Hahn-Echo*

Weiterhin kann Bild 3.27 entnommen werden, dass die erwartete Abschwächung der Intensität im Vergleich zur Messung mit der Silikonprobe moderat ist und auch bei dem verhältnismäßig

harten und eine geringe molekulare Beweglichkeit aufweisenden VPE-Material mit etwa 38 % Signalintensität ein nutzbares Signal-zu-Rausch-Verhältnis gegeben ist.

Ein weiterer Messparameter ist durch die Anzahl der „scans“ vorzugeben. Darunter sind die Wiederholungen einer einzelnen Messsequenz zu verstehen. Am Ende des Versuchs stellt jede

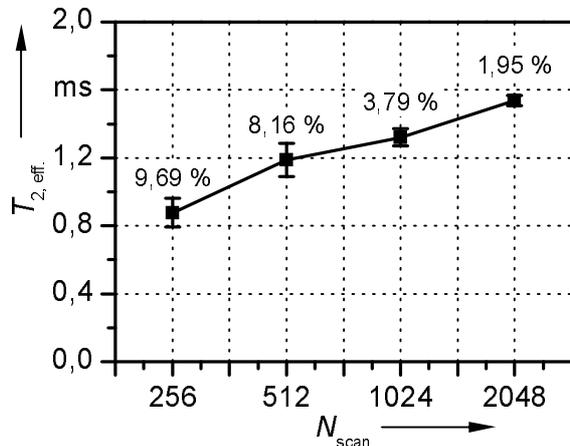


Bild 3.28: Einfluss der „scan“-Anzahl N_{scan} auf die effektive transversale Relaxationszeit $T_{2,\text{eff}}$.

Signalintensität den arithmetischen Mittelwert der bei jedem „scan“ registrierten Werte bei jeweils gleicher Echozeit dar. Der gemessene Signalabfall strebt dem Rauschniveau zu, so dass durch eine Erhöhung der „scan“-Anzahl das Signal-zu-Rausch-Verhältnis verbessert werden kann. Vor diesem Hintergrund war ein ausgewogener Kompromiss zwischen der benötigten Messdauer und der sich einstellenden Streubandbreite der Messwerte zu finden. In Bild 3.28 ist der Einfluss der „scan“-Anzahl auf die effektive transversale Relaxationszeit $T_{2,\text{eff}}$ nach Anregung mit der CPMG-Echosequenz illustriert, wobei das Verfahren zur Bestimmung von $T_{2,\text{eff}}$ im nachfolgenden Unterkapitel näher beschrieben wird. Es wurden außer der „scan“-Anzahl gleiche Messparameter vorgegeben und ein Umfang von jeweils zehn Wiederholungen durchgeführt. Die

in Bild 3.28 dargestellten Messwerte repräsentieren die jeweiligen arithmetischen Mittelwerte einschließlich der Stichproben-Standardabweichungen. Aufgrund der erzielten Ergebnisse kann festgestellt werden, dass mit zunehmender „scan“-Anzahl der Bewertungsparameter $T_{2,\text{eff}}$ merklich zunimmt und der Streubereich innerhalb eines Messumfangs gleichsam von ca. 10 % auf ungefähr 2 % abnimmt. Der letztere Effekt war infolge der erhöhten Anzahl der einzelnen Signalintensitäten bei der entsprechenden Bildung der Echoamplitude einer zugehörigen Echozeit zu erwarten. Die Zunahme der Größe $T_{2,\text{eff}}$ ist im Zusammenhang mit einer Probenerwärmung infolge der vermehrt eingestrahlten Energie aufgrund der HF-Anregung zu bewerten. Daher wurde für die nachfolgenden systematischen Untersuchungen des transversalen Relaxationsverhaltens von unterschiedlich gealterten VPE-Isolierungen für Hochspannungskabel die „scan“-Anzahl auf 256 festgelegt, da mit etwa 5 min je Messung ein moderater Zeitaufwand mit einer Streubandbreite von etwa 10 % korreliert werden kann.

Zur statistischen Absicherung wurde der transversale Signalzerfall jeder VPE-Probe aus einem Kollektiv von fünf Einzelmessungen durch Bildung des arithmetischen Mittelwertes sowie der Stichproben-Standardabweichung bestimmt.

Abschließend zeigt Tabelle 3.5 die für die verwendeten Echosequenzen eingestellten Messparameter in einer Übersicht. Für das Messprogramm an VPE-Kabelproben wurde aufgrund der kürzeren Messdauer sowie der durch die wiederholte Refokussierung höheren Signalintensität ausschließlich die CPMG-Echosequenz zur HF-Anregung eingesetzt. Die *Hahn*-Sequenz wurde nur im Rahmen der Vorversuche zur Bestimmung geeigneter Messparameter genutzt.

Tabelle 3.5: Messparameter der verwendeten Echosequenzen

Parameter	Einheit	<i>Hahn</i> -Echo	CPMG-Echo
Lamorfrequenz	MHz	20,0	20,0
Wiederholverzögerung	s	0,3	0,3
Empfangsverstärkung	dB	110	110
„scans“	–	128	256
Pulslänge	µs	5,8	5,8
Echozeit	ms	0,05	0,05
Echoanzahl	–	–	200
Messzeit je Echo	µs	–	8

3.5.1.2 Auswertung und Ergebnisdarstellung

Im folgenden Unterkapitel werden die zur Ermittlung der Bewertungsparameter angewandten Näherungsgleichungen erläutert. Dazu erfolgt zunächst eine Beschreibung der formalen Bestimmung der effektiven transversalen Relaxationszeit $T_{2, \text{eff}}$ aus unilateralen NMR-Messungen

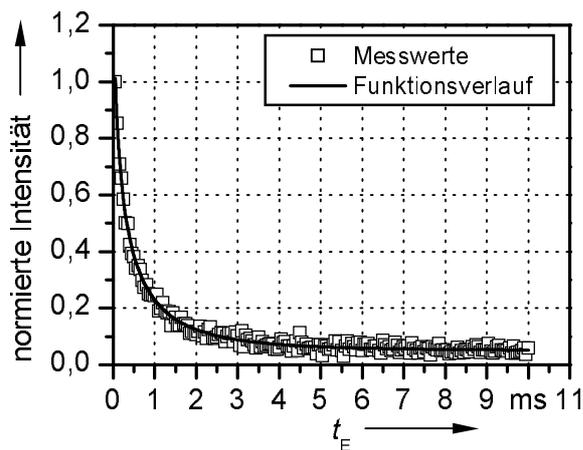


Bild 3.29: Exemplarische Darstellung der normierten Intensität der Echoamplitude in Abhängigkeit von der Echozeit t_E

mit einer NMR-MOUSE[®] (vgl. Bild 3.25). Zur Veranschaulichung ist in Bild 3.29 exemplarisch der Verlauf der an einer VPE-Kabelprobe ermittelten normierten Intensität in Abhängigkeit von der Zeit aufgetragen. Entsprechend den Ausführungen in Kapitel 3.5.1.1 nimmt der stroboskopisch gemessene Abfall der einzelnen Echoamplituden exponentiell ab. In der gängigen NMR-Literatur werden als Modellgleichungen dafür in der Regel verschiedene Ansätze zur Beschreibung des exponentiellen Signalzerfalls verwendet [Kuhn1994, Blümlich2003]. Um einen geeigneten Formelansatz auszuwählen, sind einerseits die Vereinbarkeit mit dem Verlauf zugrunde liegenden theoretischen Prozessvorstellung und andererseits eine Parameteroptimierung hinsichtlich der resultierenden Streubandbreiten zu beachten.

In der Vergangenheit konnte in umfangreichen Untersuchungen an Elastomeren eine Korrelierbarkeit der effektiven transversalen Relaxationszeit $T_{2, \text{eff}}$ hinsichtlich der Vernetzungsdichte gezeigt werden [Blümlich2000]. Vor diesem Hintergrund erfolgt daher die Annäherung der gemessenen Echoamplituden nach Gleichung 3.17

$$y(t) = A \cdot \exp\left[-(1/b) \cdot (t/T_{2, \text{eff}})^b\right] + y_0 \quad (3.17)$$

mit A , b und y_0 : Gleichungskonstanten

$T_{2, \text{eff}}$: effektive transversale Relaxationszeit.

Gleichung 3.17 wird verbreitet auch als „stretched exponential fit“ bezeichnet und findet insbesondere dann Anwendung, wenn aufgrund einer inhomogenen Struktur der untersuchten Materialprobe infolge verschiedener Wechselwirkungen kein einfach exponentielles Verhalten vorliegt und die Signalintensität rauschbehaftet ist. Diese Verhältnisse existieren prinzipiell bei NMR-Relaxometrien an Feststoffen unter inhomogenen Magnetfeldern. Im Gegensatz dazu kann bei Messungen des transversalen Relaxationsverhaltens an Flüssigkeiten ein einfach exponentieller Abfall der Echoamplituden approximiert werden.

Darüber hinaus kann eine Verknüpfung von Materialparametern der untersuchten Polymere mit ^1H -NMR-Größen der transversalen Relaxation durch die in [Kuhn1994] eingeführte Modellvorstellung beschrieben werden. Eine wesentliche Annahme dabei ist in der Netzwerkformulierung zu sehen, wobei Polymerketten zwischen zwei Vernetzungsknoten und Ketten mit freien Enden unterschieden werden und damit grundlegende Diskrepanzen in Bezug auf das molekulare Mobilitätsverhalten aufweisen. Daher kann der messtechnisch ermittelte Abfall der Echoamplituden auch in Form einer biexponentiellen Gleichung angenähert werden, die diese unterschiedlichen Molekularmobilitäten erfasst. Durch den formalen Ansatz gemäß Gleichung 3.18

$$y(t) = A_1 \cdot \exp(-t / T_{2, \text{kurz}}) + A_2 \cdot \exp(-t / T_{2, \text{lang}}) + y_0 \quad (3.18)$$

mit A_1, A_2 und y_0 : Gleichungskonstanten

$T_{2, \text{kurz}}$: charakteristische transversale Relaxationszeit kristalliner Bereiche

$T_{2, \text{lang}}$: charakteristische transversale Relaxationszeit amorpher Bereiche

können die relativen Massenanteile der Protonen in der hinsichtlich der molekularen Beweglichkeit mobileren amorphen Phase durch die Beziehung

$$AV_{\text{rel, amorph}} = A_2 / (A_1 + A_2) \quad (3.19)$$

erfasst und die entsprechenden Massenanteile der Protonen in der weniger mobilen kristallinen Phase durch den Ausdruck

$$AV_{\text{rel, kristallin}} = A_1 / (A_1 + A_2) \quad (3.20)$$

beschrieben werden. Mit diesem Formalansatz und der dazugehörigen Modellvorstellung sind Untersuchungen an Makromolekülen hinsichtlich ihrer teilkristallinen Struktur möglich, und infolge unterschiedlicher Beanspruchungen können molekulare Morphologieänderungen zugeordnet werden.

3.5.2 FTIR-Spektroskopie

Mit Hilfe der FTIR-Spektroskopie können chemische Reaktionen sowie physikalische Strukturänderungen von Kunststoffen durch Bildung neuer Schwingungsbanden oder aufgrund von Verschiebungen oder Auflösungen bestehender Banden funktioneller Gruppen detektiert werden. Registrierte Banden werden dabei infolge von diskreter Absorption elektromagnetischer Strahlung durch entsprechend angeregte Moleküle verursacht. Die für Molekülschwingungen und -rotationen aufzuwendende Energie wird im Wesentlichen von der Masse der beteiligten

Atome sowie den zwischen ihnen wirkenden Bindungskräften bestimmt. Daher absorbieren unterschiedliche funktionelle Gruppen elektromagnetische Strahlung bei verschiedenen Frequenzen, so dass das resultierende Infrarot (IR)-Spektrum charakteristisch für den untersuchten Stoff ist. Die Energie der meisten Molekülschwingungen von Substanzen sowie deren Anregung durch Strahlungsabsorption liegt im IR-Bereich des elektromagnetischen Strahlungsspektrums. Dieser Bereich wird unterteilt in das ferne (FIR - 400 cm^{-1} ... 10 cm^{-1}), das mittlere (MIR - 4000 cm^{-1} ... 400 cm^{-1}) sowie das nahe IR-Spektrum (NIR - 12800 cm^{-1} ... 4000 cm^{-1}). Der für die FTIR-Spektroskopie von Polymeren interessante Abschnitt liegt zwischen 650 cm^{-1} ... 4000 cm^{-1} und wird der Gruppe der schwingungsspektroskopischen Methoden zugeordnet [Ebert1992, Günzler2002].

Als Grundlage zur Erfassung des Spektrums einer zu untersuchenden Substanz dient der FTIR-Spektroskopie ein Interferenzverfahren, dessen wesentliche Apparatur aus einem *Michelson*-Interferometer besteht (s. Bild 3.30). In diesem Aufbau wird der von der Probe durchgelassene Lichtstrahl einer polychromatischen IR-Quelle über einen Strahlteiler und Spiegelkonstruktionen zur Überlagerung in einem Detektor gebracht. Durch einen beweglichen Spiegel kann dabei eine optische Weglängendifferenz der interferierenden Teilstrahlen moduliert werden, die einerseits zur Verstärkung oder andererseits zur Auslöschung der Einzelstrahlen führen kann. Der Detektor registriert somit die von der Probe transmittierte Strahlungsintensität in Form eines so genannten Interferogramms. Aus dem gemessenen Interferogramm wird anschließend mit Hilfe der Fourier-Transformation das zugehörige Absorptionsspektrum ermittelt. Die physikalische Auflösung, die bei der FTIR-Spektroskopie erzielt werden kann, wird wesentlich von der maximalen Auslenkung des beweglichen Spiegels bestimmt, wobei ein größerer Spiegelweg in einer höheren Auflösung resultiert. Darüber hinaus sind bei Geräten aktueller Technik sehr schnelle Änderungsgeschwindigkeiten der Spiegelauslenkung des *Michelson*-Interferometers möglich, so dass innerhalb einer kurzen Zeitdauer Mehrfacherfassungen („scans“) des Spektrums bei einer Wellenlänge durchgeführt werden können. Dadurch wird eine deutliche Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses ermöglicht.

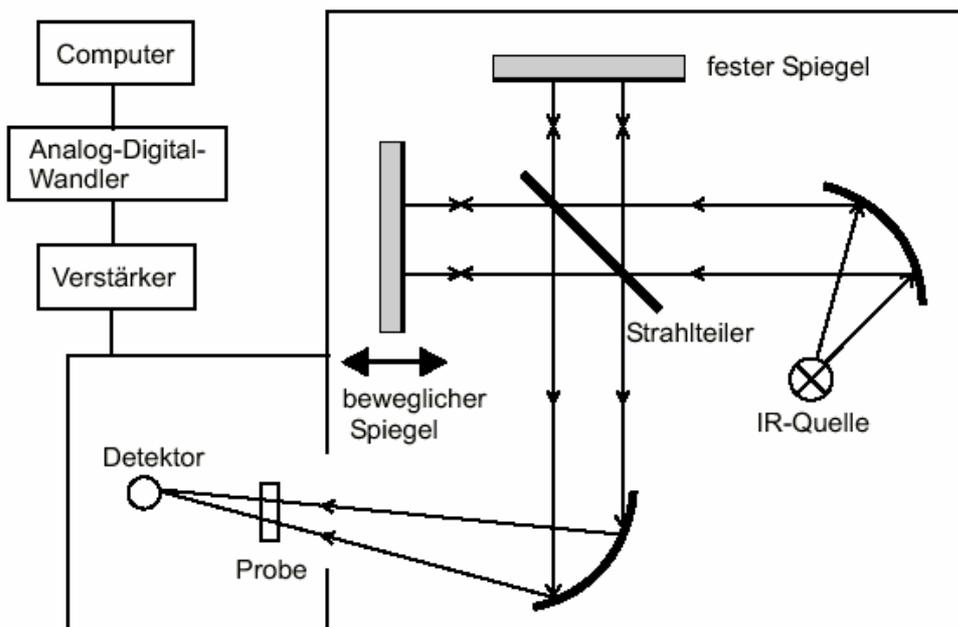


Bild 3.30: Schematischer Aufbau eines *Michelson*-Interferometers

Vor der Fourier-Transformation sind weitere Berechnungsschritte notwendig, um das gesuchte Probenspektrum zu erhalten. Mit Hilfe geeigneter Apodisationsfunktionen, die Funktionen zur Verbesserung des optischen Auflösungsvermögens darstellen, werden Störungen der Linienform des berechneten Spektrums an den Rändern unterdrückt, die durch die endliche maximal mögliche Spiegelauslenkung entstehen. Bei der Multiplikation des Interferogramms mit einer Apodisationsfunktion müssen geeignete Funktionen als Kompromiss zwischen Glättungseffektivität sowie der spektralen Auflösung verwendet werden. Darüber hinaus ist nach der Fourier-Transformation eine Phasenkorrektur zur Generierung des gesuchten reellen Probenspektrums erforderlich, da das gemessene Interferogramm nur einseitig aufgenommen wird und somit das transformierte Spektrum komplex ist [Günzler2002].

Für die Spektrenbestimmung der zu untersuchenden Probe sind zuerst ein Hintergrundspektrum ohne Probe im Strahlengang sowie anschließend das Probenspektrum aufzunehmen und zur Vermeidung von Absorptionsbanden durch Umgebungseinflüsse durcheinander zu dividieren. Durch die Umgebungsluft im Labor können z. B. deutliche Strukturen von Wasser (H_2O) und Kohlenstoffdioxid (CO_2) Banden erzeugt werden, die in der Praxis durch eine kontinuierliche Spülung eines gekapselten Probenraumes mit H_2O - und CO_2 -freier Luft weitgehend vermieden werden können. Weiterhin ist die experimentell erfassbare Strahlungsabsorption der zu untersuchenden Probe in Form der so genannten Extinktion auf der Grundlage des *Lambert-Beerschen* Gesetz proportional zur Probendicke, so dass diese entsprechend genau zu bestimmen ist.

Bei der Auswertung von FTIR-Spektren wird zwischen qualitativer und quantitativer Spektreninterpretation unterschieden. Dabei wird zunächst durch eine qualitative Analyse des IR-Spektrums der untersuchten Probe das Kohlenstoffgerüst der Verbindung ermittelt, um eine grundlegende Einordnung der Banden durch Vergleiche mit Spektrenkatalogen aus der Literatur vornehmen zu können. Dafür werden die Bereiche der C–H-Valenzschwingungen (3300 cm^{-1} ... 2800 cm^{-1}), die Abschnitte der C–H-Deformationsschwingungen (1540 cm^{-1} ... 650 cm^{-1}) sowie die Bereiche der Gerüstschwingungen (1700 cm^{-1} ... 600 cm^{-1}) herangezogen. Die Absorptionsbanden der Gerüstschwingungen sind charakteristisch für das untersuchte Molekül und werden daher oft auch als „fingerprint region“ bezeichnet. Im Allgemeinen werden nach der Zuordnung des Gerüsttyps mit Hilfe charakteristischer Frequenzen die funktionellen Gruppen des Stoffes ermittelt, deren Absorptionsbanden im Bereich oberhalb von etwa 1700 cm^{-1} auftreten. Hinsichtlich der Molekülschwingungen kann bei einem mehratomigen Molekül eine Schwingung näherungsweise als Bewegung aller Atome aufgefasst werden. Es gibt aber trotzdem viele Schwingungen, deren Bewegung sich nur auf Teilbereiche des Moleküls konzentriert und einen Großteil der gesamten Schwingungsenergie absorbiert. In diesem Fall werden die atomaren Bewegungen als Gruppenschwingungen erfasst, die umso ausgeprägter sind, je stärker sich die dazugehörige Frequenz von den übrigen Absorptionsfrequenzen des Spektrums unterscheidet. Diese charakteristischen Gruppenspektren werden daher bei der qualitativen Interpretation zur Ermittlung von Strukturelementen einer Verbindung aus den Bandenlagen des gemessenen IR-Spektrums extrahiert. Dem Bereich der qualitativen Spektrenanalyse ist darüber hinaus die Separation von Störsignalen zuzuordnen, die durch Lösungs- oder Reinigungsmittel, Verunreinigungen oder Einflüsse der Umgebungsluft verursacht werden [Ebert1992, Günzler2002].

Unmittelbar an die qualitative Analyse des aufgenommenen IR-Spektrums schließt sich üblicherweise dessen quantitative Interpretation zur Bestimmung der Mengen der verschiedenen

Probenbestandteile in Form von Extinktionen an. Dazu erfolgt in der Regel eine Aufbereitung der Spektrendaten [Otto1997]. Zunächst können durch eine spektrale Glättung der Messdaten mit digitalen Filtern Hintergrundstörungen oder Rauschteile reduziert und somit eng nebeneinander liegende Banden besser aufgelöst werden. Weit verbreitet findet dabei eine Polynomglättung mit *Savitzky-Golay*-Filtern Anwendung, da durch eine unterschiedliche Gewichtung der Rohdaten die Signalintensität nahezu unverändert bleibt und somit charakteristische Bandenkonturen weitgehend erhalten werden. Die im Anschluss an eine Glättung der gemessenen IR-Spektren durchgeführte Interpretation kann auf unterschiedliche Weise vorgenommen werden. Zur Bestimmung von maximalen Extinktionen bei diskreten Wellenzahlen ist zuerst eine Korrektur der Basislinie vorzunehmen, da diese z. B. durch Emissionsstrahlung, Streulicht und Reflexionen an Grenzflächen oder Streuverlusten der Probe nicht konstant hinsichtlich des Wellenzahlenbereiches ist. Im Anschluss daran sind die Extinktionswerte dem aufbereiteten Spektrum zu entnehmen. Weiterhin kann die Spektrenanalyse auch in Form der Derivativspektroskopie ausgeführt werden. Durch die Berechnung der ersten und gegebenenfalls auch zweiten Ableitung wird eine Erhöhung der spektralen Empfindlichkeit durch die Beseitigung von Untergrundstörungen erreicht und somit eine größere Auflösung hinsichtlich der Bandenseparation ermöglicht. Da aber die Signableitung sehr empfindlich in Bezug auf das Signalrauschen ist, wird in der Praxis eine derartige Spektrenauswertung oftmals auf die Bildung der ersten Ableitung beschränkt. Sehr geringe Signalabsorptionen können auch durch Anwendung der Differenzspektroskopie ausgewertet werden. Differenzspektren werden durch die Subtraktion von Absorptionsspektren zweier unterschiedlicher Zustände der untersuchten Probe erhalten. Dadurch wird der Großteil der sich nicht ändernden Absorptionsbeiträge eliminiert und die Methode sensitiv auf kleine Absorptionsveränderungen [Pump1979, Günzler2002].

Zum Abschluss der vorangegangenen Ausführungen hinsichtlich der FTIR-Spektroskopie zur physikalischen Analyse von Stoffen soll noch auf materialbedingte Eigenarten von Polymeren in Bezug auf ihre IR-Aktivität eingegangen werden. Polymere sind prinzipiell aus zahlreichen chemisch identischen Grundbausteinen aufgebaut, so dass das IR-Spektrum weitgehend dem der Monomereinheit entspricht. Da diese Einheiten jedoch üblicherweise chemisch miteinander verbunden sind, entsteht eine damit verbundene Kopplung charakteristischer Schwingungen, die zu einer Aufspaltung von aktiven Banden führt. Darüber hinaus kann eine Bandenverbreiterung auch durch intermolekulare Wechselwirkungen innerhalb des Molekülverbandes hervorgerufen werden, wobei dadurch in kristallinen Bereichen eine Bandenaufspaltung möglich ist.

3.5.2.1 Versuchsaufbau und -durchführung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden FTIR-Spektroskopien mit einem Einkanal-FTIR-Spektrometer IFS 88 der Firma *Bruker* durchgeführt. Dabei erfolgte die Anregung im MIR-Bereich mit einem Globar und die Detektion mit einem Fotodetektor aus Quecksilber-Cadmium-Tellur (HgCdTe), der mit flüssigem Stickstoff gekühlt wurde. Weiterhin wurde ein Strahlteiler mit einem Kaliumbromid (KBr)-Substrat genutzt. Über ein mit dem FTIR-Spektrometer kombiniertes IR-Mikroskop vom Typ IRScope II der Firma *Bruker* bestand die Möglichkeit, den IR-Strahl zu fokussieren und somit ein den Messanforderungen entsprechendes Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu erzielen. Die Apparatur ermöglichte eine maximale Auflösung von 2 cm^{-1} . Mit Hilfe der zur Durchführung der Spektrenaufnahme verwendeten Messsoftware wurde eine Apodisationsfunktion vom Typ *Blackman-Harris* 3-Term verwendet und eine Phasenkorrektur nach *Mertz* angewandt.

Alle Messungen wurden bei Raumtemperatur an radialen Dünnschnitten unterschiedlich gealterter VPE-Kabelproben mit einer Messfenstergröße von ca. $40 \mu\text{m} \times 150 \mu\text{m}$ sowohl im Bereich der Grenzfläche zwischen Isolierung und innerer Leitschicht (Pos. 1) als auch in der Region zwischen Isolierung und äußerer Leitschicht (Pos. 2) realisiert, wie in Bild 3.31 verdeutlicht wird. Eine Fixierung der Proben erfolgte dabei auf einer Schlitzblendenkonstruktion. Für Hintergrund- und Probenmessung wurden jeweils 50 „scans“ akkumuliert und voneinander subtrahiert. Die VPE-Dünnschnitte wurden auf einem Mikrotomschlitten aus tiefgefrorenem VPE-Probenmaterial angefertigt und anschließend hinsichtlich ihrer Dicke jeweils an drei über den radialen Querschnitt verteilten Messstellen (Pos. 1, Pos. 2 und etwa mittig dazwischen) mit einer Mikrometerschraube mit Andruckrätche vermessen. Durchschnittlich waren die untersuchten Dünnschnitte $111 \mu\text{m}$ dick, wobei die Gesamtheit der einzelnen Abmessungen lediglich eine sehr geringe Streuung von etwa 0,2 % untereinander aufwies. Somit konnte im Rahmen der quantitativen Spektrenauswertungen von der Verwendung einer Referenzbande - bei PE wird zur Normierung üblicherweise die Absorption bei 2019 cm^{-1} als innerer Standard verwendet [Saetre2004] - zur Interpolation auf identische Schichtdicken abgesehen werden. Daher wurde aufgrund der nur geringfügigen Probendickenunterschiede die Spektrenanalyse mit den gemessenen Extinktionen durchgeführt, da insbesondere Unterschiede zwischen verschiedenen gealterten Proben relativ zueinander im Focus dieser Untersuchungen standen.

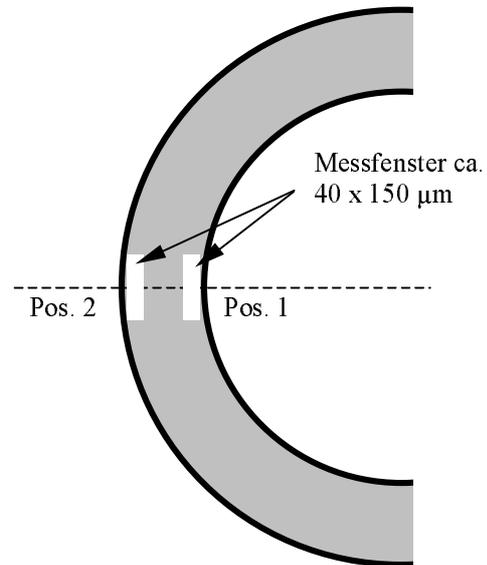


Bild 3.31: Positionierung des Messfensters bei FTIR-Spektroskopien an VPE-Dünnschnitten

3.5.2.2 Auswertung und Ergebnisdarstellung

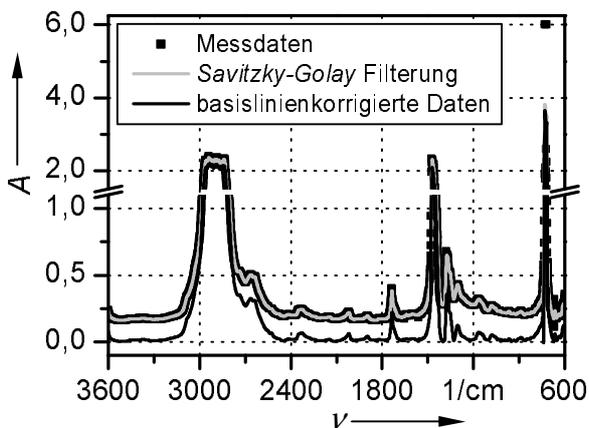


Bild 3.32: Darstellung der Datenaufbereitung von FTIR-Spektroskopien an VPE-Dünnschnitten mit dem spektralen Absorptionsmaß A in Abhängigkeit von der Wellenzahl ν

In Bild 3.32 ist exemplarisch ein Messdatensatz und dessen weitere Bearbeitung skizziert. Der Darstellung kann entnommen werden, dass die Messdaten hinsichtlich der durchgeführten Glättung mit einem *Savitzky-Golay*-Filter zweiter Ordnung sowie einer Fensterbreite von 17 Werten in ihren charakteristischen Bandenkonturen nicht unzulässig verfälscht werden und ihre Signalintensität nicht signifikant reduziert wird. Weiterhin ist eine Basislinienkorrektur der Messdaten sinnvoll, da die vorherrschenden Messbedingungen offensichtlich einen Einfluss auf die maximalen Extinktionen aufweisen. Anstelle der Bezeichnung E für Extinktion wird im Weiteren die gleichwertige Bezeichnung A für spektrales Absorptionsmaß verwendet, um Verwechslun-

gen mit der für die elektrische Feldstärke üblichen Bezeichnung zu vermeiden. Bild 3.32 zeigt darüber hinaus in dem untersuchten Wellenzahlbereich sehr intensive Absorptionsbanden ($A > 0,5$) des untersuchten VPE-Materials in den Bereichen 3000 cm^{-1} ... 2800 cm^{-1} , 1500 cm^{-1} ... 1400 cm^{-1} und 740 cm^{-1} ... 710 cm^{-1} . Diese starken Banden dokumentieren den organischen Charakter des Materials und basieren vornehmlich auf Alkaneverbindungen (s. Tabelle 3.6 und [Günzler2002]), die aufgrund des atomaren Molekülaufbaus des Polymeren in verschiedenen Schwingungsformen und damit unterschiedlichen Wellenzahlbereichen IR-aktiv sind. Weiterhin ist eine deutliche Bandenverbreiterung in der Region zwischen etwa 3000 cm^{-1} und 2800 cm^{-1} feststellbar, die auch als Indikator für das Vorliegen eines polymeren Stoffes betrachtet werden kann. Dabei wird in diesem Bereich eine Bandenseparation durch überlappende intensive Banden infolge molekularer Wechselwirkungen stark erschwert.

Tabelle 3.6: Korrelation IR-aktiver Bindungen und ihrer charakteristischen Absorptionen [Römpf2005]

Bindung	Verbindungs-kategorie	Absorption (cm^{-1})	Typ
C–H	Alkane	2850...2960	V. S.
		1350...1470	D. S.
C–C	Methylgruppen	1370...1385	D. S.
C=C	Alkene	1640...1680	V. S.
C≡C	Alkine	2150...2260	V. S.
C–C	Aromaten	1450...1600	V. S.
C–O	Alkohole, Ether, Carbonsäuren, Ester	1000...1300	V. S.
C=O	Aldehyde, Ketone, Carbonsäuren, Ester	1690...1760	V. S.
O–H	Alkohole, Phenole (isoliert)	3590...3650	V. S.
	Alkohole, Phenole (H-verbrückt)	3200...3600	V. S.
	Carbonsäuren (H-verbrückt)	2400...3300	V. S.

V. S.: Valenzschwingung

D. S.: Deformationsschwingung

In der physikalischen Analyse von Makromolekülen mit Hilfe der FTIR-Spektroskopie werden im Rahmen der durchgeführten Untersuchungen einige separate Bandenabsorptionen näher betrachtet und in Korrelation zu den jeweiligen beaufschlagten Alterungsparametern gestellt. In Bild 3.33 ist die Separation materialspezifischer Absorptionsbanden schematisch dargestellt.

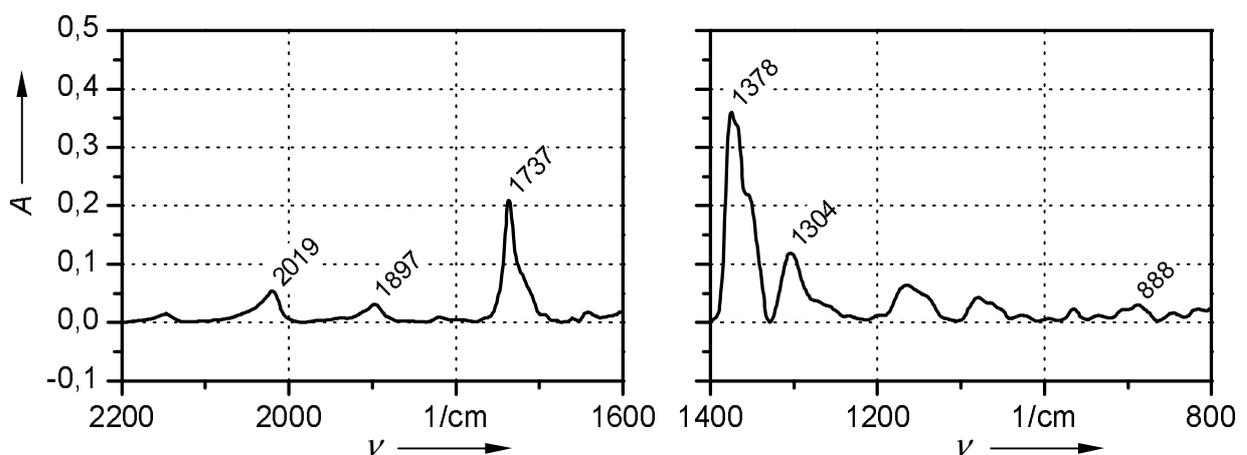


Bild 3.33: Schematische Separation materialspezifischer Absorptionsbanden

Die Bedeutung der aufgeführten Banden kann z. B. anhand ausgewählter Literaturstellen [Nitsche1962, Pump1979, Gagnon1989, Ebert1992, Parpal1993, Günzler2002] sowie der ASTM-Publikation ASTM D5576 wie folgt zusammengefasst werden:

- 2019 cm^{-1} : amorph/kristalline Bande von Polyethylen
- 1897 cm^{-1} : kristalline Bande von Polyethylen
- 1737 cm^{-1} : Carbonylverbindungen (Aldehyde, Ester)
- 1378 cm^{-1} : Methyl-Gruppe
- 1304 cm^{-1} : amorphe Bande von Polyethylen
- 888 cm^{-1} : Vinyliden-Gruppe.

Die Auswahl obiger IR-aktiver Absorptionsbanden wurde vor dem Hintergrund getroffen, das Vorliegen einer Korrelierbarkeit der beaufschlagten Alterungsparameter mit molekularen Strukturänderungen des Polymermaterials zu prüfen. Dabei erlauben Kenntnisse über den Methylgruppengehalt Aussagen über den Verzweigungsgrad des Thermoplasten und damit über dessen Materialdichte [Vieweg1969, Pump1979]. Allerdings ist aus Untersuchungen von [Bald1974] bekannt, dass die Absorptionsbande der Methylgruppe von LDPE bei 1378 cm^{-1} von Banden bei 1369 cm^{-1} und 1353 cm^{-1} überlagert werden, die den Methylgruppen der amorphen Bereiche des PE zugeordnet werden. Zur Bestimmung geringer Unterschiede im Methylgruppengehalt von LDPE ist daher eine optische Kompensation der störenden Banden mit einem LDPE-Standard ähnlicher Dichte vorteilhaft, da die Überlagerungen vom Kristallinitätsgrad abhängig sind. In Bild 3.33 ist das Vorhandensein dieser Einflussgrößen durch die Ausbildung einer so genannten Schulter, die in der Regel durch zwei oder mehrere sich überlappende und nicht separierte Banden entsteht, im abfallenden Bereich der Absorption bei 1378 cm^{-1} zu erkennen. Im Rahmen der hier durchgeführten Auswertungen der FTIR-Spektroskopien wurde keine Kompensation vorgenommen, da sich nach der durchgeführten Signalglättung und der anschließenden Basislinienkorrektur eine ausreichend hohe Auflösung der verschiedenen Extinktionsunterschiede hinsichtlich einer qualitativen Bewertung eingestellt hat.

Eine Untersuchung des Doppelbindungsgehaltes von Polyolefinen ist in Bezug auf deren Relevanz für Vernetzungsreaktionen, verschiedene Abbauprozesse sowie chemische Umsetzungen von Interesse [Vieweg1969]. Bei PE wird dabei üblicherweise zwischen der IR-Aktivität von Vinylgruppen, Vinylidengruppen sowie trans-Vinylengruppen unterschieden, wobei entsprechend den Angaben in ASTM D3124 im Hochdruckverfahren radikalisch polymerisiertes Polyethylen einen überwiegenden Doppelbindungsanteil aufgrund von Vinylidenbindungen aufweist. Daher ist die Intensität dieser Bande bei ca. 888 cm^{-1} für verschieden beanspruchte VPE-Kabelproben ausgewertet worden. Hinsichtlich der Interpretation von Vinylidengruppen spezifischen Absorptionsbanden bezüglich vernetzungsrelevanter Materialumsetzungen werden in der Literatur z. B. in [Lazár2004] Zusammenhänge zwischen der relativen Vernetzungseffektivität von Polymerketten verschiedener peroxidisch vernetzter Polyethylene und dem Vinylidengruppengehalt diskutiert. Dabei wird einem höheren Gehalt an Vinylidenbindungen ein positiver Beitrag in Bezug auf die Polymervernetzung aufgrund der Formation von zusätzlichen freien rekombinationsaktiven Allyl-Radikalen zugeschrieben. Somit resultiert ein Anstieg der Vinylidengruppen aktiven IR-Absorptionsbande in einer Abnahme des Vernetzungsgrades des Polymeren.

Chemische Vorgänge einer Materialalterung infolge von Oxidationsprozessen, wie z. B. Auto- und Thermooxidation, können durch Veränderungen der Molekularstruktur analysiert werden, indem charakteristische IR-Absorptionsbanden von Carbonylverbindungen in dem Wellenzahlbereich zwischen 1800 cm^{-1} und 1700 cm^{-1} geeignet ausgewertet werden [Gagnon1989, Günzler2002]. In der Vergangenheit hat sich dabei gezeigt [Crine1991], dass FTIR-Spektroskopien von vollständig aufgebauten Kabeln entnommenen Materialproben auch IR-aktive Absorptionsintensitäten in dem für Carbonylverbindungen charakteristischen Bereich aufweisen, die infolge von Migrationsprozessen niedermolekularer Stoffe aus den an den Isolierstoff angrenzenden Leitschichten in das Polymervolumen hervorgerufen werden. Aus [Haridoss1990, Bulinski1998] kann dazu abgeleitet werden, dass insbesondere die Bande bei 1742 cm^{-1} charakteristisch für Esterverbindungen niedermolekularer Stoffe aus den auf EEA basierenden Leitschichten ist. Erschwert wird eine eindeutige Zuordnung der IR-aktiven Banden im Bereich von 1800 cm^{-1} bis 1700 cm^{-1} zusätzlich durch IR-Absorptionen aufgrund von Esterfunktionalitäten der verwendeten Antioxidanten, wie z. B. bei Irganox, die zu Bandenüberlagerungen führen [Haridoss1990, Crine1991]. In diesem Zusammenhang ist auch zu berücksichtigen, dass bedingt durch die Verschiebung einzelner Banden aufgrund nicht berücksichtigter Masseinflüsse, Dipol-Dipol-Interaktionen oder intermolekularer Wechselwirkungen die durch Migration entstandenen IR-Banden nicht immer eindeutig zugeordnet werden können. Daher ist es im Rahmen der Spektreninterpretation oft sinnvoll, zur feinen Unterscheidung dicht beieinander liegender Banden so genannte charakteristische Kontrollbanden heranzuziehen, um eine sichere Zuordnung zu ermöglichen.

Die weiteren, separat ausgewerteten IR-aktiven Banden bei 1304 cm^{-1} , 1897 cm^{-1} und 2019 cm^{-1} wurden hinsichtlich der teilkristallinen Struktur des VPE ausgewählt. Einerseits wurden in der Vergangenheit insbesondere die Absorptionsbanden bei 1304 cm^{-1} und 1897 cm^{-1} für die Kristallinitätsbestimmung aus IR-Spektroskopien bei Polyethylenen unter der Annahme eines Zweiphasensystems verwendet [Hendus1961]. Andererseits dient die Bande bei 2019 cm^{-1} verbreitet als innerer Standard, indem zur Berücksichtigung von Probendickenunterschieden eine Normierung der untersuchten Extinktion auf diesen Bezug durchgeführt wird. Vor diesem Hintergrund ist anzumerken, dass die Extinktion bei 2019 cm^{-1} nicht oder nur unwesentlich von strukturellen Morphologieänderungen des Makromoleküls abhängt. Daher eignet sich diese Bande gut zur Kontrolle der Messgenauigkeit einer FTIR-Spektroskopie sowie der durchgeführten Datenbehandlung.

3.5.3 Dichtemessung

Dichtemessungen an teilkristallinen Polymeren können zahlreiche Informationen liefern, wobei hinsichtlich der Materialdichte insbesondere Kenntnisse für die konstruktionstechnische Bauteilauslegung, über technologische Eigenschaften sowie Struktur bestimmende Polymercharakteristiken von Bedeutung sind. Darüber hinaus ist aus der Literatur bekannt, dass einerseits der Kristallinitätsgrad von Makromolekülen aus Dichtebestimmungen abgeleitet werden kann und andererseits das Wärmeleitvermögen von Polymerwerkstoffen von der Materialdichte beeinflusst wird [Vieweg1969, Krollmann2000]. Die Bestimmung der Kristallinität von Kunststoffen kann mit Hilfe von verschiedenen Verfahren durchgeführt werden. Dabei können z. B. Röntgendiffraktometrien, Kalorimetrien, FTIR-Spektroskopien oder NMR-Spektroskopien neben Dichtemessungen angewandt werden. Allerdings sind die mit den verschiedenen Verfahren am gleichen Werkstoff ermittelten Dichten nicht identisch, da das der Interpretation der Messergebnisse zugrunde liegende Zweiphasenmodell teilkristalliner Stoffe nur eingeschränkt der Realität ent-

spricht. Insbesondere hat die interstitielle Phasengrenze zwischen den amorphen und kristallinen Bereichen eine endliche Ausdehnung, worauf die einzelnen Untersuchungsmethoden unterschiedlich stark empfindlich sind. Die kristalline Phase ist in der Regel jedoch nicht ideal kristallin, so dass Kristallbaufehler von den jeweiligen Verfahren effektiv verschieden detektiert werden [Schaumburg1997].

In vielen verschiedenen Anwendungsbereichen wird die Dichte zur Kennzeichnung von Material- oder Produkteigenschaften verwendet und kann zusammen mit anderen Informationen Auskunft über mögliche Ursachen für Änderungen von Produkteigenschaften geben. Zur Bestimmung der Materialdichte sind die Masse und das Volumen der jeweiligen Probe zu ermitteln, wobei die Masse direkt und das Volumen nur indirekt messbar sind. In der Praxis erfolgt weit verbreitet die Volumenbestimmung von Festkörpern gravimetrisch. Dazu eignet sich bei festen Stoffen das Pyknometerverfahren, indem Glas- oder Metallgefäße mit definiertem Volumen für Differenzwägungen in einer Referenzflüssigkeit bekannter Dichte benutzt werden. Im Vergleich zu den ebenfalls zur Dichtebestimmung von Feststoffen nutzbaren Auftriebs- oder Verdrängungsverfahren ist die Pyknometermethode jedoch arbeits- und deutlich zeitintensiver.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Dichtemessungen erfolgten vor dem Hintergrund der Prüfung von strukturellen Materialveränderungen innerhalb der VPE-Isolierung infolge der beaufschlagten unterschiedlichen Alterungsbeanspruchungen. Als Bewertungsgröße wurde aus diesen Versuchen der Kristallinitätsgrad abgeleitet und unter Beachtung der unterschiedlichen Versuchsbedingungen mit den Resultaten aus den FTIR-Spektroskopien exemplarisch korreliert.

3.5.3.1 Versuchsaufbau und -durchführung

Die Dichtebestimmung an Kleinproben von unterschiedlich elektrisch und thermisch gealterten VPE-Kabeln wurde nach der Pyknometermethode in Anlehnung an die Normen ASTM D792 und VDE 0276-605/A1 durchgeführt. Dazu wurde ein Glaspyknometer mit einer Kapazität von 50 ml sowie eine Analysewaage der Firma *Mettler* mit einer Genauigkeit von 0,01 mg benutzt. Die Untersuchungen erfolgten bei Umgebungsbedingungen. Als Referenzmedium bekannter Dichte wurde destilliertes Wasser eingesetzt, dessen Dichtewerte temperaturkorrigiert wurden. Der Messumfang bestand aus jeweils zehn Einzelmessungen.

Im einem Messvorgang erfolgte zunächst die Massenbestimmung des leeren trockenen Glaspyknometers. Anschließend wurde eine Kleinprobe der VPE-Isolierung von ca. 5 g in das Behältnis gegeben und die Gesamtmasse ermittelt. Danach wurde das Probenmaterial wieder entfernt und das Pyknometer maximal mit destilliertem Wasser befüllt und gewogen. Zum Abschluss erfolgte das Einbringen der Probe in das flüssigkeitsgefüllte Pyknometer, wobei die verdrängte Flüssigkeit entsprechend dem Probenvolumen aus dem Messbehältnis entfernt wurde sowie die Wägung der Gesamtmassen von Glaspyknometer, VPE-Probe und Referenzflüssigkeit. Die Kleinproben aus VPE-Kabeln wiesen jeweils einen halbkreisringförmigen Querschnitt (vgl. Bild 3.31) ohne Leitschichtmaterial auf. Damit sind Dichteänderungen infolge von alterungsbedingten Materialveränderungen in integraler Form hinsichtlich der Isolierwandstärke zu betrachten, so dass Abweichungen des aus Dichtemessungen sowie aus FTIR-Spektroskopien an verschiedenen radialen Positionen ermittelten Kristallinitätsgrades zu erwarten sind.

3.5.3.2 Auswertung und Ergebnisdarstellung

Aus den entsprechend Kapitel 3.5.3.1 bestimmten vier Massewerten jeweils einer Messwertaufnahme lässt sich die resultierende Materialdichte nach

$$\rho = \left((m_2 - m_0) \rho_{\text{aq. dest.}} \right) / \left((m_1 - m_0) - (m_3 - m_2) \right) \quad (3.21)$$

- mit m_0 : Masse des leeren Pyknometers
 m_1 : Masse des vollständig flüssigkeitsgefüllten Pyknometers
 m_2 : Masse des leeren Pyknometers und der Materialprobe
 m_3 : Masse des vollständig flüssigkeitsgefüllten Pyknometers und der Materialprobe
 $\rho_{\text{aq. dest.}}$: Dichte von destilliertem Wasser

berechnen, wobei der Wert für $\rho_{\text{aq. dest.}}$ hinsichtlich der jeweiligen Umgebungstemperatur anhand von Tabellenwerten korrigiert wurde. Somit wurden je untersuchter VPE-Probe zehn Dichtewerte ρ ermittelt und die daraus bestimmten arithmetischen Mittelwerte einschließlich der Stichproben-Standardabweichungen in den zugehörigen Diagrammen dargestellt.

Darüber hinaus wurde aus den jeweiligen makroskopisch gemessenen Materialdichten ρ unter der Annahme eines Zweiphasenmodells für teilkristalline Polymere [Batzer1985] der Kristallinitätsgrad α gemäß

$$\alpha = \left((\rho - \rho_a) / (\rho_k - \rho_a) \right) \cdot (\rho_k / \rho) \quad (3.22)$$

- mit ρ : gemessene Materialdichte
 ρ_a : ideale Dichte der amorphen Phase (0,852 g/cm³ [Elias2001])
 ρ_k : ideale Dichte der kristallinen Phase (1,000 g/cm³ [Elias2001])

berechnet.

4 Darstellung und Diskussion der Versuchsergebnisse

In diesem Abschnitt werden die erzielten Resultate der experimentellen Versuche vorgestellt und mit Hilfe der sich aus der Literatur ergebenden Ansätze physikalisch gedeutet. Dabei ist die Darstellung der Ergebnisse an die Reihenfolge in Kapitel 3 angelehnt. Zuerst wird über eine elektrische Charakterisierung der untersuchten VPE-Isolierung für Energiekabelanwendungen in Form zerstörender Anfangs- und Restfestigkeitsprüfungen berichtet, wobei hinsichtlich der Einflüsse vorgegebener Alterungsbeanspruchungen differenziert wird. Danach erfolgt eine Präsentation von dielektrischen Spektroskopien im Zeit- und Frequenzbereich. Bei den Ergebnissen aus den Zeitbereichsuntersuchungen werden isotherme und thermisch stimulierte Phänomene im Hinblick auf das Verhalten charakteristischer Kenngrößen besonders betrachtet. Neben den Einflüssen unterschiedlicher Alterungsbeanspruchungen auf die evaluierten Kennwerte wird auch auf von Umgebungs- und Versuchsparametern verursachte Beeinflussungen eingegangen. Abschließend dienen die Resultate aus den durchgeführten physikalischen Analysen zur Klärung möglicher Alterungseffekte von VPE-isolierten Energiekabeln durch elektrische und thermische Beanspruchungen.

4.1 Anfangsfestigkeit des untersuchten Modellkabels

Im Verlauf dieses Abschnitts werden die mit den in Kapitel 3.2 beschriebenen Prüfverfahren ermittelten Anfangsfestigkeiten der untersuchten VPE-isolierten Modellkabel vorgestellt. Dazu zeigt zunächst Bild 4.1 das Verteilungsquantil aus den im Ramptest bestimmten Durchschlagspannungen bei Raumtemperatur. Aus den generierten Messwerten konnte mit Hilfe einer zweiparametrischen Form der Weibull-Verteilungsfunktion unter Abschätzung der Parameter nach Maximum-Likelihood ein Referenzwert von 200 kV bestimmt werden, der eine kumulative Ausfallwahrscheinlichkeit des Prüfkollektivs von 63,2 % repräsentiert. Die untere bzw. obere 95-%-Vertrauensgrenze beträgt dabei etwa 184 kV resp. 220 kV. Darüber hinaus kann den Durchschlagspannungen ein „slope“-Wert von ca. 15 zugeordnet werden, der als nur geringe Streubreite innerhalb des untersuchten Kollektivs betrachtet werden kann. Weiterhin ist aus Bild 4.1 einer kumulativen Ausfallwahrscheinlichkeit von 1 % eine Durchschlagspannung von ca. 147 kV zuzuordnen. Unter Berücksichtigung der vorliegenden Kabelgeometrie kann daraus eine Leiterfeldstärke von ca. 64 kV/mm abgeleitet werden. In [Ishibashi1998] wird ein empirisch ermittelter Zusammenhang zwischen der Isolierwandstärke und der kumulativen Ausfallwahrscheinlichkeit von 1 % für in der 500-kV-Spannungsebene eingesetzte Materialqualitäten angegeben. Eine Übertragung dieses Ansatzes auf die Geometrie des verwendeten Modellkabels ergibt eine maximale Designfeldstärke von 65 kV/mm. Dieser Wert stimmt sehr gut mit der aus den Ramptestversuchen bestimmten Größe überein. Aufgrund dieser Validierung der Versuchsergebnisse kann davon ausgegangen werden, dass der Isolierstoff der untersuchten VPE-isolierten Modellkabel elektrische Eigenschaften be-

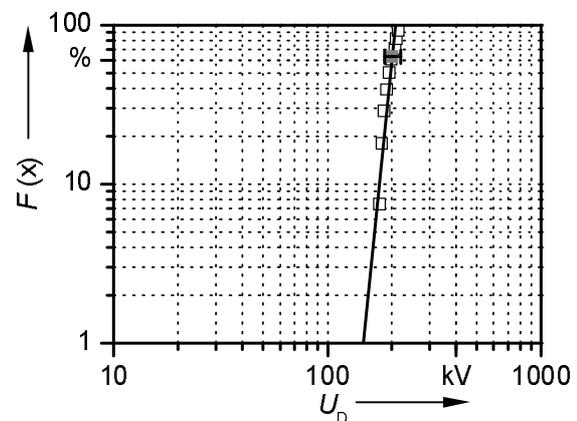


Bild 4.1: Verteilungsquantil $F(x)$ der im Ramptest ermittelten Durchschlagspannungen U_D mit 95-%-Vertrauensgrenzen

sitzt, die für Materialqualitäten von Energiekabeln im Hoch- und Höchstspannungsbereich gefordert werden. Diese Aussage ist sehr wichtig, um die erzielten Ergebnisse an den Modellkabeln auch auf Kabel mit realen Abmessungen übertragen zu können. Es ist bei der Übertragung jedoch zu beachten, dass generell ein Volumeneffekt bei der Bewertung elektrischer Eigenschaften von festen Isolierstoffen vorhanden ist.

Der ermittelte Referenzwert von 200 kV für die intrinsische Materialfestigkeit der untersuchten VPE-Isolierung wurde zur Bestimmung des Startwertes der im Anschluss an die Rampstestversuche durchgeführten Stufentestuntersuchungen herangezogen (vgl. Kapitel 3.2.1). In Bild 4.2 ist

der Einfluss verschiedener Leitertemperaturen zwischen 20 °C und 130 °C auf die Stehspannung von ungealterten VPE-isolierten Modellkabeln aufgetragen. Der Darstellung kann entnommen werden, dass eine Erhöhung der Leitertemperatur von 20 °C auf 70 °C eine moderate Zunahme der Stehspannungsfestigkeit verursacht, die hier in Form von Weibull-Nennwerten einschließlich unterer und oberer 95%-Vertrauensgrenzen angegeben ist. Eine weitere Steigerung der Leitertemperatur auf 130 °C zieht eine nachfolgende Abnahme der Stehspannungswerte nach sich, wobei bei einer Temperatur von 130 °C im Vergleich zu 20 °C eine Festigkeitsabnahme von ca. 10 % auftritt. Die Ausbildung eines Maximums im temperaturabhängigen Verlauf der Stehspannung kann prinzipiell auf zwei gegenläufige Effekte zurückgeführt werden, dessen Erscheinungen unterschiedliche Formen aufweisen können. Zum einen bewirkt im Anfangszustand des Isolierstoffes eine Temperaturerhöhung einen Abbau innerer mechanischer Spannungen. Dabei ist dessen Verringerungspotenzial temperatur- und zeitabhängig. Darüber hinaus stellt sich infolge des Temperaturanstieges eine erhöhte Elektronenbeweglichkeit und damit eine geringere Verweildauer der Ladungsträger in energetisch lokalisierten Zuständen ein, wodurch eine Abnahme der Ladungsträgerdichte in der bei Wechselspannungsbeanspruchung entstehenden negativen Raumladungszone innerhalb des Isolierstoffes folgt (s. Kapitel 1.2.1). Auf Grund dessen nimmt die Feldüberhöhung bei zylindrischer Elektrodenanordnung speziell im Innenleiterbereich der Isolierung ab, wodurch als Konsequenz eine Zunahme der elektrischen Festigkeit mit ansteigenden Temperaturen eintritt [Asmuth1982, Wintle1983, Bartnikas1997].

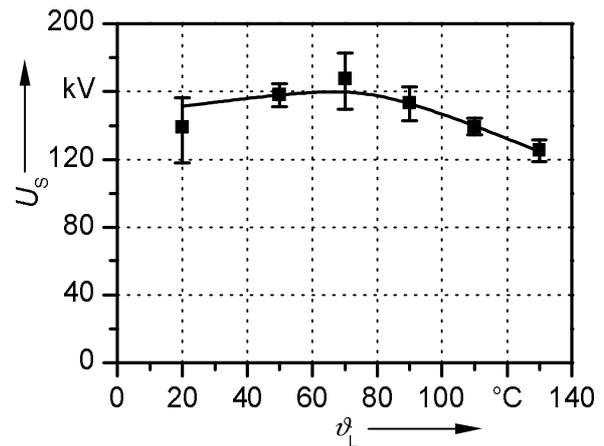


Bild 4.2: Stehspannung U_s VPE-isolierter Modellkabel im Anfangszustand in Abhängigkeit von der Leitertemperatur ϑ_L

Zum anderen steigt mit höheren Temperaturen die Leitfähigkeit des Materials an, da durch die Erwärmung eine vermehrte Ladungsträgeraktivierung aus lokalisierten Zuständen größerer energetischer Tiefe und somit eine höhere Elektronendichte in den Leitungsniveaus bzw. in den lokalisierten Zuständen geringer energetischer Tiefe verursacht wird [Asmuth1982, Wintle1983]. Als Folge des temperaturbedingten Leitfähigkeitsanstieges tritt eine Abnahme der elektrischen Festigkeit ein [Beyer1989].

Ähnliche Ergebnisse können den Untersuchungen zur Anfangsfestigkeit von VPE-isolierten Modellkabeln in [Schiller1996] entnommen werden. Dort zeigte sich, dass nach einer Vakuumkonditionierung zur Entfernung von Vernetzerspaltprodukten ein relatives Maximum der Stehspannungsfestigkeit der untersuchten Kabel im Temperaturbereich zwischen 60 °C und 100 °C zu beobachten ist. Weiterhin wurde festgehalten, dass Temperaturen von über 100 °C zu einer Abnahme der ermittelten Stehspannungswerte führen.

Der hinsichtlich der elektrischen Kurzzeitfestigkeit polymerer Isolierstoffe nachteilige Einfluss erhöhter Temperaturen bei Kurzzeituntersuchungen an Proben im Anfangszustand wird zudem durch im Konstantspannungstest ermittelte Resultate an VPE-isolierten Modellkabeln verdeut-

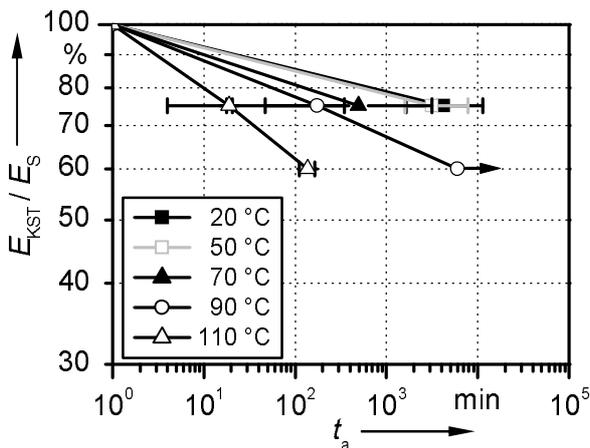


Bild 4.3: Im Konstantspannungstest ermittelte elektrische Festigkeit E_{KST} bezogen auf die im Stufentest bestimmte Festigkeit E_S in Abhängigkeit von der Alterungsdauer t_a für verschiedene Leitertemperaturen

licht (s. Bild 4.3). Im Rahmen dieser Zusatzversuche wurde in einem Leitertemperaturbereich von 20 °C bis 110 °C eine konstante elektrische Beanspruchung eingestellt, die 75 % der an Modellkabeln im Anfangszustand bestimmten Stehspannungsfestigkeit E_S entspricht, und die bis zum Durchschlag verbleibende Zeit aufgezeichnet. Der Darstellung in Bild 4.3 kann entnommen werden, dass mit zunehmender Leitertemperatur kürzere Alterungszeiten erzielt werden. Dieser Beobachtungstrend wird durch die Ergebnisse ergänzender Versuche mit Beanspruchungen auf einem 60%-Level der im Anfangszustand ermittelten Stehspannungsfestigkeit gestützt. Der in Richtung längerer Alterungszeiten weisende Pfeil am Messpunkt für 60 % und 6000 min stellt dabei den Fall ohne Probendurchschlag dar. Da die Beanspruchungspegel bei dieser Versuchsreihe aus elektrischer Sicht

verhältnismäßig hoch sind, liegt neben einem temperaturbedingten Leitfähigkeitsanstieg auch eine verstärkte Ladungsträgerinjektion in das Isolierstoffvolumen vor. Dadurch tritt eine temperaturbasierte Abnahme der Ladungsträgerdichte in der bei Wechselladungsbeanspruchung entstehenden negativen Raumladungszone nicht merklich ein, und ein Festigkeitsanstieg mit zunehmender Temperatur kann nicht festgestellt werden. Durchschlagrelevant ist in diesem Zusammenhang das Produkt aus Ladungsträgerdichte und -beweglichkeit, das hier vorwiegend durch die elektrische Beanspruchung bestimmt und durch einen temperaturverursachten Leitfähigkeitsanstieg verstärkt wird [Olshausen1979, Beyer1986, Kahle1989].

4.2 Restfestigkeitsverhalten gealterter VPE-isolierter Modellkabel

In diesem Unterkapitel wird über den Einfluss der Alterungstemperatur, der -feldstärke und der -dauer auf das elektrische Restfestigkeitsverhalten von unterschiedlich vorbeanspruchten VPE-isolierten Modellkabeln (vgl. Tabelle 3.2 in Kapitel 3.1.2) berichtet. Eine Beschreibung der angewandten Prüftechnik sowie der benutzten Auswertemethodik kann den Kapiteln 3.2.1 und 3.2.2 entnommen werden.

4.2.1 Einfluss der Alterungstemperatur und der -feldstärke

Zunächst erfolgt eine Diskussion der Ergebnisse von Restfestigkeitsuntersuchungen an gealterten VPE-isolierten Modellkabeln. Dabei werden die Probenkollektive mit Alterungszeiten von 100 h und 5000 h betrachtet, wobei unterschiedliche elektrische Beanspruchungen realisiert wurden. Eine Alterungsdauer von 100 h ist für geringe Temperaturen mit hoher Wahrscheinlichkeit nicht ausreichend, um morphologische Materialveränderungen herbeizuführen. Dieser Effekt tritt wenn überhaupt erst bei sehr hohen Temperaturen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur oder darüber auf. Daher sind in Bild 4.4 auf die Betriebsfeldstärke E_0 bezogene Restfestigkeiten E_{RF} in Abhängigkeit der Alterungstemperatur aufgetragen, um den Einfluss verschiedener Alterungsfeldstärken auf das Restfestigkeitsverhalten VPE-isolierter Modellkabel zu untersuchen und mögliche Einwirkungen unterschiedlicher Alterungstemperaturen auf die entsprechenden elektrischen Restfestigkeiten zu bewerten.

Im Vergleich mit den im Anfangszustand der Kabelproben bei 20 °C ermittelten Festigkeitswerte aus Bild 4.2 zeigen die entsprechenden Daten aus Bild 4.4 einen Anstieg mit zunehmender Beanspruchungsdauer. Die Höhe der elektrischen Alterungsfeldstärke wirkt sich dabei offensichtlich nicht aus. Dieser Festigkeitszuwachs erscheint zunächst merkwürdig und kann bei zusätzlicher Temperatureinwirkung auch nicht mehr so eindeutig beobachtet werden. Eine Erklärung für dieses Verhalten lässt sich jedoch unter Zuhilfenahme der in [Auckland1990] präsentierten Resultate finden. Danach können sich höhere Durchschlagwerte nach netzfrequenten Wechselfeldbeanspruchungen ergeben, da im Werkstoffvolumen vorhandene innere mechanische Spannungen durch Schwingungseffekte infolge von viskoelastischen Kriechvorgängen abgebaut werden. Als Ursache für die Schwingungseinwirkung können elektrostatische Kräfte dienen, die durch das Wechselfeld erzeugt werden. Die Beeinflussung der mechanischen Materialspannungsverhältnisse durch netzfrequente elektrische Felder ist nach [Auckland1990] nicht elektronischer Natur, was die scheinbar nicht vorhandene Abhängigkeit des Effektes von der Höhe der elektrischen Beanspruchung verdeutlicht. Somit ist eine wesentliche Zeitabhängigkeit gegeben.

Dieser Deutungsansatz wird auch von den in [Schiller1996] ermittelten Ergebnissen unterstützt. Dort zeigte sich, dass die elektrische Restfestigkeit von konditionierten VPE-isolierten Modellkabeln nach einer elektrischen Vorbeanspruchung mit netzfrequenter Wechselspannung höher ist als die entsprechenden Werte nach einer Beanspruchung mit Gleichspannung. Dieser Entspannungseffekt des Materials in mechanischer Hinsicht ist jedoch vermutlich nur bis zu einer frequenzabhängigen Obergrenze wirksam, da eine elektrische Alterung mit höheren Frequenzen

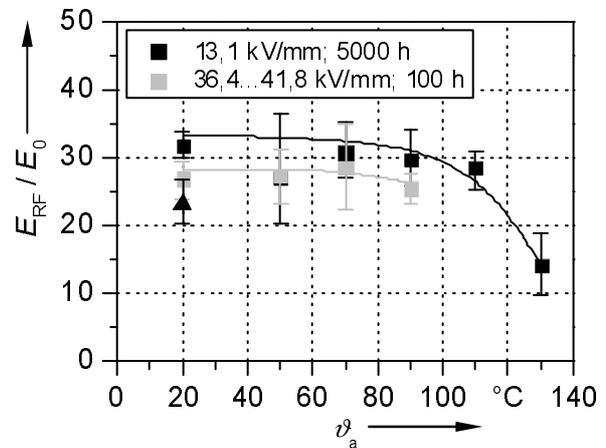


Bild 4.4: Auf die Betriebsfeldstärke E_0 bezogene elektrische Restfestigkeit E_{RF} von VPE-Modellkabeln für verschiedene Alterungsparameterkombinationen in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a ; zum Vergleich ist die Anfangsfestigkeit nach Bild 4.2 bei 20 °C angegeben (schwarzes Dreieck samt 95%-Vertrauensgrenzen)

eine im Vergleich zur Vorbeanspruchung mit 50 Hz geringere Lebensdauer von VPE-isolierten Modellkabeln verursacht [Schiller1996].

Hinsichtlich des Unterschiedes der Festigkeitswerte bei 20 °C im Anfangszustand und nach elektrischer Beanspruchung ist anzumerken, dass die angewandten Prüfverfahren voneinander abweichen (vgl. Kapitel 3.2.1). Nach [Schiller1996] ist eine Stufendauer von 5 min innerhalb eines Stufentests für die Bildung einer Raumladungszone in den Isolierstoffrandschichten ausreichend. Beim in dieser Arbeit durchgeführten Testverfahren zur Bestimmung der Anfangsfestigkeit betrug die Prüfdauer bis zum Durchschlag durchschnittlich ca. 40 min. Es wurde im Vergleich zum Prüfablauf zur Bestimmung der Restfestigkeit, wo im Mittel 130 min bis zum Durchschlag bei geringerer vorgegebener Stufenspannung benötigt wurden, ein höheres Spannungsniveau innerhalb kürzerer Zeit erreicht, so dass ein möglicher Raumladungsaufbau durch die größere elektrische Beanspruchung ausgeprägter eintreten kann. Dieser Effekt würde zu einer stärkeren Feldüberhöhung und damit zu geringeren Durchschlagwerten führen.

Des Weiteren ergaben Untersuchungen in [Krohne1978] an modellförmigen VPE-Proben unter netzfrequenter Wechselspannungsbeanspruchung im homogenen Feld, dass bis zu applizierten Feldstärken von etwa 100 kV/mm eine Zunahme der Beanspruchungsdauer zu einer Abnahme der Ladungsträgerdichte im Isolierstoff führt. Eine Ladungsträgerausbreitung über makroskopische Bereiche wird vorwiegend durch Diffusionsvorgänge verursacht, die jedoch stark von der Morphologie des Isolierstoffs und der Einwirkungsdauer beeinflusst werden. Da eine in inhomogenen Feldern durch Raumladungen herbeigeführte Feldüberhöhung annähernd den Faktor 2 erreichen kann, bilden sich bei geringeren Ladungsträgerdichten auch weniger große Feldverstärkungen aus, so dass mit größeren Festigkeitswerten nach längeren Beanspruchungszeiten zu rechnen ist.

Die Ausführungen hinsichtlich der Resultate rein elektrischer Alterungsbeanspruchungen abschließend sei angemerkt, dass temperaturbedingte Einflüsse auf morphologische Materialmodifikationen und Veränderungen hinsichtlich des Ladungsträgerverhaltens durch die Kombination unterschiedlicher Zeit- und Feldstärkeparameter in komplexer Wechselwirkung zueinander stehen. In der Regel sind diese Korrelationen schwierig zu ermitteln, da oftmals spezifische Effekte erst erkennbar werden, wenn einzelne Beanspruchungsparameter bestimmte Schwellwertbereiche überschritten haben. Ein Vergleich der bei Temperaturen oberhalb von 20 °C ermittelten Anfangsfestigkeitswerten mit den hinsichtlich der Temperatur korrespondierenden Restfestigkeitswerten ist nicht zulässig, da die jeweiligen Prüftemperaturen verschieden waren und somit unterschiedliche Effekte wirksam sind.

Im Folgenden wird eine Bewertung des Einflusses verschiedener Alterungstemperaturen auf die elektrische Restfestigkeit von VPE-isolierten Modellkabeln für zwei unterschiedliche Kombinationen der Alterungsfeldstärke und -dauer vorgenommen. Dazu kann zunächst Bild 4.4 entnommen werden, dass in Verbindung mit einer Alterungsfeldstärke von 13,1 kV/mm für eine Dauer von 5000 h eine Beanspruchungstemperatur bis etwa 90 °C das Restfestigkeitsverhalten der Modellkabel nicht wesentlich beeinflusst. Hinsichtlich des verhältnismäßig geringen Weibull-Nennwertes bei 50 °C ist anzumerken, dass aufgrund des begrenzten Probenumfangs sehr niedrige Werte als Ausreißergrößen einen vergleichsweise großen Einfluss auf die Bestimmung des Nennwertes haben. Diese Tatsache ist auch an der vergleichsweise großen Streubandbreite der 95%-Vertrauensgrenzen auszumachen. Eine Steigerung der Alterungstemperatur auf 110 °C

bzw. 130 °C ruft jedoch im Vergleich zum zuvor beschriebenen Bereich einen Festigkeitsabfall von ca. 10 % bzw. 50 % hervor. Als Ursache für das temperaturstabile Restfestigkeitsverhalten bis ca. 90 °C können dem Isolierstoff beim Fertigungsprozess zugefügte Antioxidantien sowie nur schwach vorhandene Modifikationen der Werkstoffmorphologie infolge des Temperatureinflusses betrachtet werden. Ergebnisse (s. Kapitel 4.6.2) der in Kapitel 3.5.2 beschriebenen FTIR-Spektroskopien weisen bei den entsprechenden mit 110 °C bzw. 130 °C beanspruchten Proben im Vergleich zu den korrespondierenden Kollektiven bei niedrigeren Temperaturen einen Anstieg im Gehalt der Carbonylgruppenverbindungen auf, der als charakteristisch für eine Materialalterung infolge von Oxidationsprozessen angesehen werden kann (vgl. Kapitel 3.5.2.2). Darüber hinaus ist die im Vorangegangenen festgestellte Abnahme der elektrischen Restfestigkeit bei hohen Temperaturen auch mit morphologischen Materialveränderungen verbunden. Die Ergebnisse in Abschnitt 4.6.1 der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten NMR-Untersuchungen (s. Kapitel 3.5.1) zeigen, dass durch derartige Beanspruchungen teilkristalliner Werkstoffe eine Abnahme des Kristallinitätsgrades verursacht wird. Durch die damit verbundene Vergrößerung der amorphen Bereiche stellen sich höhere Ladungsträgerbeweglichkeiten ein, die unter entsprechender Feldeinwirkung zu beschleunigten Materialdegradationen und somit zu geringeren elektrischen Festigkeiten führen [Takahashi1985]. Der Aspekt der Festigkeitsabnahme nach Alterung mit hohen Temperaturen wird zusätzlich auch dadurch verstärkt, dass amorphe Bereiche eine höhere Leitfähigkeit aufweisen als kristalline Zonen [Boggs1998].

Generell übt die molekulare Zusammensetzung fester Isolierstoffe einen wesentlichen Einfluss auf das Durchschlagverhalten aus. Dabei erfordern deren temperaturbedingte Eigenschaftsveränderungen eine integrierte Betrachtung bei der Deutung von Durchschlagbeobachtungen [Kahle1989]. Im Fall von teilkristallinen Polymeren stellen interstitielle Bereiche bevorzugte Initiierungsbereiche für Durchschlagentwicklungen dar, und bei Festigkeitsbetrachtungen ist auch das Verhalten von leitfähigen oder dielektrisch wirksamen Molekülen im elektrischen Feld zu berücksichtigen. Sie können bei ausreichend langer Expositionsdauer in eine makromolekulare Matrix diffundieren und sich infolge *Maxwell*scher Kräfte des gestörten Feldes an Stoffinhomogenitäten anlagern. Dadurch wird hinsichtlich der geometrischen Form eine Art Abrundung der Materialstörungen eingeleitet, so dass die lokale Feldstärke im Bereich dieser Fehlstellen abgeschwächt wird und sich ein Anstieg der Durchschlagfestigkeit einstellt. Das Diffusionsverhalten entsprechender Moleküle ist jedoch stark temperatur- und zeitabhängig und wird auch von den morphologischen Eigenschaften des Polymers beeinflusst [Kahle1989].

Weiterhin zeigt Bild 4.4, dass die elektrische Restfestigkeit von mit vergleichsweise hohen Feldstärken über eine Dauer von 100 h beanspruchten Probenkollektiven im Vergleich mit den zuvor erläuterten Ergebnissen geringer ist. Die festgestellte Abnahme beträgt bei 20 °C ca. 7 % und bei 90 °C etwa 14 %. Daher ist zunächst anzumerken, dass eine Alterungszeit von 100 h bei separater Temperatureinwirkung mit großer Wahrscheinlichkeit nicht ausreicht, um strukturelle Materialdegradationen zu verursachen. Es ist somit vornehmlich von durch die elektrische Feldeinwirkung initiierten Effekten auszugehen, die sich in der beobachteten Festigkeitsreduktion äußern. Allerdings ist nicht auszuschließen, dass durch die applizierten Alterungsfeldstärken Zustandsveränderungen des Isolierstoffes eingeleitet werden, die auch bei vergleichsweise kurzen Beanspruchungszeiten temperaturbedingte Einflüsse auf die Werkstoffstruktur eröffnen können. Eine Materialalterung, die sich in einer verminderten Restfestigkeit äußern kann, ist nach dem z. B. in [Parpal1997] formulierten thermodynamischen Ansatz vorstellbar, da Feldstärken von 36,4 kV/mm bis 41,8 kV/mm deutlich über dem für elektrische Alterungseffekte von poly-

meren Energiekabelisolierungen relevanten Schwellwertbereich von etwa 8 kV/mm bis 15 kV/mm liegen (s. Kapitel 3.1). Durch ausreichend hohe elektrische Feldstärken werden dabei mit zunehmender Dauer mehr Hohlräume submikrometrischer Größenabmessungen (vgl. Kapitel 1.2.2) erzeugt, wodurch lokale Energieverteilungen im Isolierstoffvolumen verändert werden. Infolgedessen können thermische Fluktuationen in vorwiegend amorphen Bereichen herbeigeführt werden, so dass örtlich begrenzte Veränderungen der Polymermorphologie denkbar sind. Als Folge davon stellen sich geringere Restfestigkeiten nach hinreichend hohen Wechselfeldbeanspruchungen ein. Dabei sind jedoch genügend lange Einwirkzeiten erforderlich. Neben dem zuvor beschriebenen Deutungsansatz für die festgestellte Abnahme der elektrischen Restfestigkeit kann auch die Ausbildung von Raumladungen für die Herabsetzung der Restfestigkeitswerte verantwortlich sein. Dabei ist eine Überlagerung beider Effekte denkbar. Durch die bei Beanspruchungen mit 36,4 kV/mm bis 41,8 kV/mm im Vergleich zu 13,1 kV/mm höhere Wahrscheinlichkeit für den Aufbau von negativen Raumladungen wird im Isolierstoff eine ungünstigere Feldverteilung hervorgerufen, die bei an die Alterung anschließenden Wechselspannungsprüfungen zu geringeren Durchschlagwerten führt. Durch die höhere Feldstärke werden vermehrt Ladungsträger in lokalisierte Zustände größerer energetischer Tiefe transportiert und gespeichert, wodurch sich die resultierende Feldüberhöhung im Vergleich zur Beanspruchung mit geringeren Feldstärken verstärkt. Der in Bild 4.4 ersichtliche Restfestigkeitsunterschied zwischen den beiden Probenkollektiven ist auch im Zusammenhang mit der sich bei längeren Beanspruchungszeiten ergebenden Abnahme der Ladungsträgerdichte zu diskutieren. Dieser Effekt äußert sich insbesondere dann, wenn die elektrische Feldeinwirkung moderat ist und Ladungsträger somit nur in lokalisierte Zustände geringer energetischer Tiefe transportiert und gespeichert werden können. Zusätzlich verstärkt wird dieser Mechanismus durch einen Anstieg der Temperatur, infolgedessen erhöhte Elektronenbeweglichkeiten geringere Aufenthaltsphasen der Ladungsträger in „traps“ verursachen. Darüber hinaus ist deren Verteilung im Dielektrikum auch von der morphologischen Struktur abhängig, die sich besonders bei langer Einwirkung hoher Temperaturen verändern kann.

Die in diesem Abschnitt erläuterten Resultate zeigen, dass die elektrische Restfestigkeit VPE-isolierter Modellkabel bis zur maximalen Betriebstemperatur von 90 °C bei gleichzeitiger elektrischer Wechselfeldbeanspruchung mit 13,1 kV/mm in einem Zeitfenster bis 5000 h annähernd temperaturunabhängig ist. Höhere Temperaturbeanspruchungen führen hingegen zu einem deutlichen Festigkeitsabfall. Eine Beeinflussung der Restfestigkeit durch Feldeffekte bei Applikation der etwa dreifachen Betriebsfeldstärke für 100 h ist vorhanden. Jedoch ist die im untersuchten Temperaturbereich beobachtete Festigkeitsabnahme nur gering. Allerdings können an dieser Stelle weitere Untersuchungen bei zeitlich ausgedehnter Beanspruchung auf einem höheren Temperaturniveau Erkenntnisse hinsichtlich des Einflusses von Feldeffekten liefern. Dabei ist die Versuchstechnik gegebenenfalls anzupassen.

Versuche mit höheren Feldstärken an vollständigen Modellkabeln sind mit Blick auf praktische Anforderungen notwendig (s. Bild 1.4). Andere Untersuchungen in [Bezille1994] haben gezeigt, dass nach einem Alterungsprogramm mit einer Alterungsfeldstärke von 9 kV/mm, zyklischen Temperaturbeanspruchungen bis 105 °C und Alterungszeiten bis zu 30000 h in der Nähe der Leitschichtmaterialien eine im Vergleich zu geometrisch entfernteren Isolierstoffvolumenbereichen nur geringe Abnahme der elektrischen Festigkeit eintritt. Als Ursache für diese Beobachtung werden Diffusionsvorgänge von Stoffen mit kleiner relativer Molmasse aus den Leitschichten in das VPE angenommen. Darüber hinaus werden als Konsequenz aus den ermittelten

Ergebnissen im Wesentlichen thermische Effekte als verantwortlich für Alterungsvorgänge betrachtet. Festigkeitsmindernde Effekte infolge von Diffusionsabläufen sind in engem Zusammenhang mit der Materialstruktur und deren zahlreichen Beeinflussungsgrößen zu betrachten, so dass Entwicklungen von Isoliermaterialien mit beständigen Eigenschaften im gegenwärtigen Fokus stehen.

4.2.2 Einfluss der Alterungsdauer

Da viele Effekte im Kontext mit Alterungsvorgängen bei Polymerisierungen zeitabhängige Erscheinungsformen aufweisen, wird in diesem Abschnitt separat der Einfluss unterschiedlicher Alterungszeiten auf die elektrische Restfestigkeit VPE-isolierter Modellkabel diskutiert. In Bild 4.5 sind dazu einige ausgewählte Ergebnisse zusammengefasst.

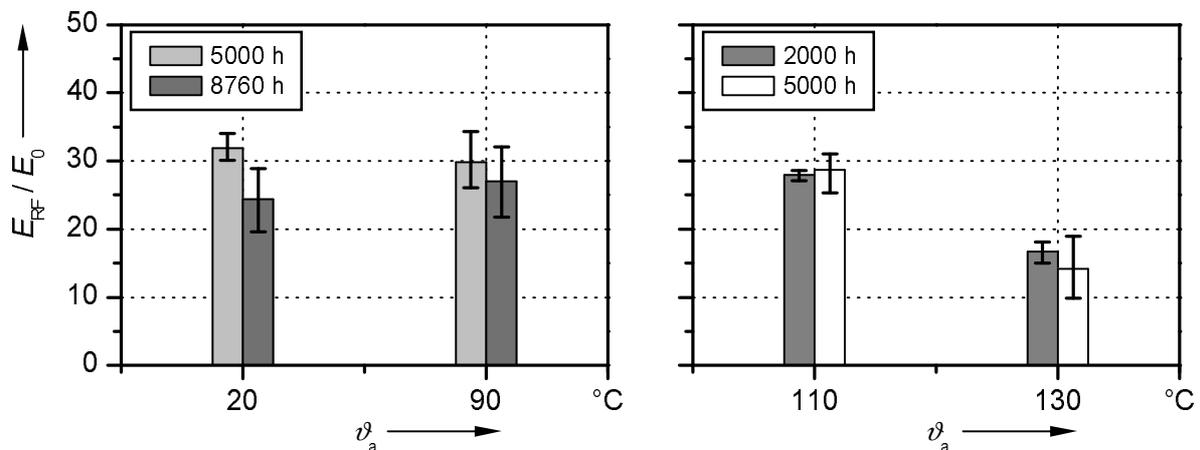


Bild 4.5: Auf die Betriebsfeldstärke E_0 bezogene elektrische Restfestigkeit E_{RF} von VPE-Modellkabeln für verschiedene Alterungszeiten in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a ($E_a = 13,1$ kV/mm)

Vor dem Hintergrund der Resultate aus Kapitel 4.2.1 erfolgt die Betrachtung des Zeiteinflusses auf die elektrische Restfestigkeit gealterter VPE-isolierter Modellkabel bei Alterungstemperaturen bis einschließlich 90 °C und davon separiert bei entsprechend höheren Temperaturen. Das linke Diagramm in Bild 4.5 zeigt, dass eine Erhöhung der Alterungsdauer von 5000 h auf 8760 h bei Alterungstemperaturen von 20 °C und 90 °C jeweils eine Abnahme der elektrischen Restfestigkeit verursacht. Die Reduktion ist bei 90 °C mit etwa 9 % kleiner als bei 20 °C mit ca. 24 %. Die bei rein elektrischer Alterung festgestellte Verminderung der Restfestigkeit steht zunächst im Widerspruch zu den entsprechenden im vorangegangenen Abschnitt dargestellten Resultaten. Dort wurde jedoch bereits darauf hingewiesen, dass festigkeitsrelevante Mechanismen oftmals erst sichtbar werden, wenn einzelne Beanspruchungsgrößen bestimmte Schwellwertbereiche überschritten haben. In diesem Fall können für den Festigkeitsabfall Mechanismen gemäß dem in [Parpal1997] beschriebenen thermodynamischen Ansatz ursächlich sein. Die darüber hinaus beobachtete Verminderung der Festigkeitsabnahme mit zunehmender Alterungstemperatur ist sehr wahrscheinlich auf die mit höheren Temperaturen verbundene Nachkristallisation zurückzuführen, die eine Materialverdichtung verursacht. Infolgedessen steigt die Festigkeit im Vergleich zu den Werten nach ausschließlich elektrischer Vorbeanspruchung an, und der registrierte Unterschied im Restfestigkeitsverhalten verringert sich.

Dieser Deutungsansatz wird durch die in der rechten Graphik von Bild 4.5 dargestellten Ergebnisse gestützt. Unter der Annahme, dass ähnliche Mechanismen bei höheren thermischen Beanspruchungen kürzere Zeitrahmen bis zur Wahrnehmung benötigen, weisen die Probenkollektive mit einer Alterungstemperatur von 110 °C zunächst keine wesentlichen Unterschiede hinsichtlich ihres Restfestigkeitsverhaltens aufgrund von verlängerten Beanspruchungszeiten auf. Im Fall einer Vorbelastung mit 130 °C ist dem Ansatz folgend mit einer stärkeren Restfestigkeitsabnahme zu rechnen, die sich hier mit ca. 12 % infolge der längeren Alterungsdauer einstellt.

Es kann nach der vorstehenden Ergebnisdiskussion festgestellt werden, dass eine Verlängerung der Alterungsdauer bei elektrischer und thermischer Beanspruchung erst nach einer ausreichend langen Periode zu erkennbaren Abnahmen hinsichtlich der elektrischen Restfestigkeit führt. Der Reduktionsumfang ist dabei abhängig vom thermischen Beanspruchungsniveau. Die im Wesentlichen für die Verminderung der Restfestigkeit ursächlichen Veränderungen der Materialmorphologie sind durch komplexe Wechselwirkungen zwischen thermischen und zeitlichen Einflussgrößen gekennzeichnet. Hauptsächlich ist dabei von Modifikationen des Kristallinitätsgrades auszugehen.

4.3 Verhalten charakteristischer Kennwerte von isothermen Depolarisationsstromverläufen

Vor dem Hintergrund der Ausführungen in Kapitel 3.3.1 wird im folgenden Unterkapitel über die erzielten Ergebnisse bezüglich des isothermen Depolarisationsverhaltens unterschiedlich vorbeanspruchter VPE-Modellkabel berichtet. Die im Nachstehenden in den gezeigten Diagrammen dargestellten charakteristischen Relaxationszeitkonstanten $\tau_{1...3}$ sind mit dem in Kapitel 3.3.1.3 beschriebenen Verfahren ermittelt worden.

4.3.1 Einfluss der Alterungstemperatur, der -feldstärke und der -dauer

Feste verlustarme Isolierstoffe können Unterschiede in ihrem Depolarisationsverhalten aufweisen. Diese resultieren vorwiegend aus Veränderungen im Bereich von Grenzflächenpolarisationen. Daher üben besonders Alterungsbeanspruchungen, die morphologische Materialmodifikationen verursachen, einen nachdrücklichen Einfluss auf die Materialdepolarisation aus. Aber auch Effekte im Zusammenhang mit Ladungsträgerinjektionen und deren Transport und Speicherverhalten im Isolierstoffvolumen spielen bei der Analyse von Depolarisationsvorgängen eine Rolle.

In diesem Kontext werden zunächst die in Bild 4.6 veranschaulichten Versuchsergebnisse unter Ausschluss thermischer Beanspruchungen erörtert. Die in den Diagrammen als durchschlagbehaftet gekennzeichneten Werte konnten ermittelt werden, da aus den im Alterungsversuch durchgeschlagenen Kabelproben noch vollständige Prüflinge für die dielektrischen Diagnoseuntersuchungen extrahierbar waren (s. Kapitel 3.1.2). Aus der oberen Graphik ist ersichtlich, dass die Werte der Relaxationszeitkonstante τ_1 für Proben ohne elektrischen Ausfall während des Alterungsprogramms tendenziell niedriger sind, als die korrespondierenden Daten von Kabelmustern mit Durchschlag. Innerhalb der beiden voneinander abgegrenzten Bereiche zeigt τ_1 darüber hinaus keine wesentliche Abhängigkeit von der Dauer der Beanspruchung. Scheinbar liegt jedoch eine Beeinflussung von τ_1 durch die Höhe der Alterungsfeldstärke vor. Dieser Trend kann darauf zurückgeführt werden, dass aufgrund der Applikation höherer Feldstärken mit verstärkten Ladungsträgertransporten in lokalisierte Zustände größerer energetischer Tiefe zu rechnen ist und

somit das Potenzial von im Isolierstoff gespeicherten Ladungsträgern tendenziell ansteigt. Dabei ist jedoch nicht auszuschließen, dass bei deutlich längerer Wechselfeldbeanspruchung auch Ladungsträgerverarmungseffekte eintreten können, wie sie z. B. in [Krohne1978] oder [Platbrood2002] beobachtet wurden. Infolge der größeren Zeitwerte sind im komplexen Relaxationsverhalten des Isolierstoffes langsamere

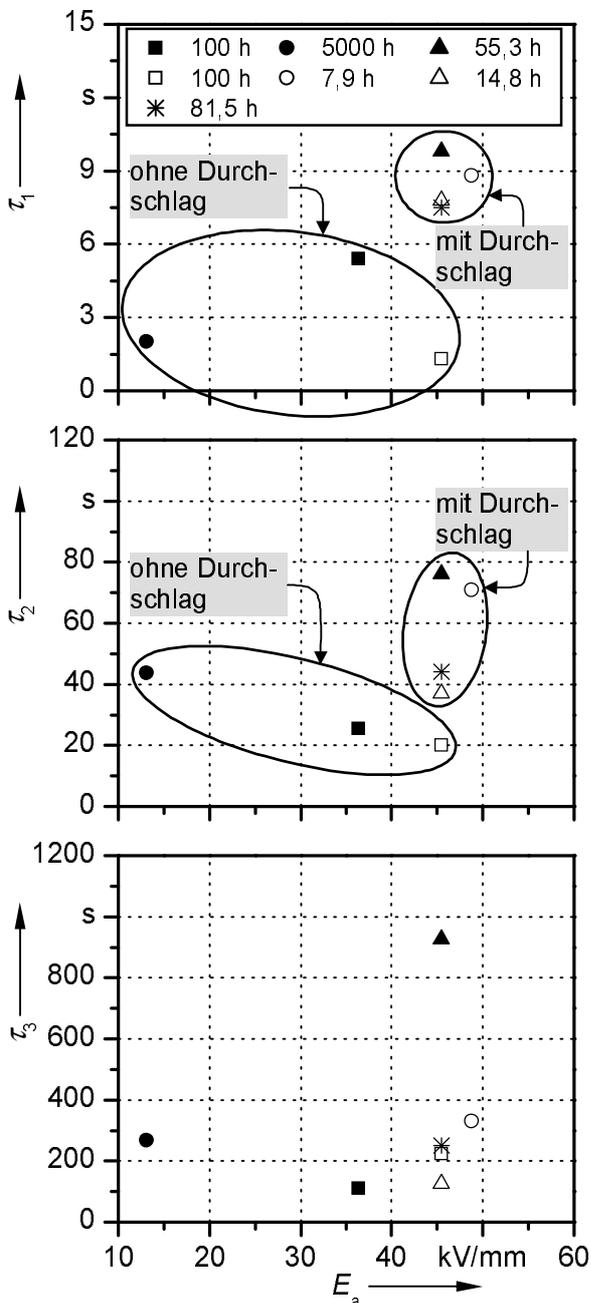


Bild 4.6: Relaxationszeitkonstanten $\tau_{1...3}$ gealterter VPE-Kabelproben in Abhängigkeit von der Alterungsfeldstärke E_a mit der Alterungsdauer als Parameter ($\vartheta_a = 20^\circ\text{C}$)

külen vorhanden, die verschiedene energetische Niveaus besitzen. Daher ist im Fall erhöhter elektrischer Wechselfeldbeanspruchungen eine Beeinflussung der lokalisierten physikalischen Zustände möglich, da die für sie ursächlichen Konformationsdefekte durch die Energiezufuhr

Zeitanteile anzunehmen. Dabei ist allerdings zu berücksichtigen, dass mit einer Gleichfeldformierung von zu kurzer Dauer gegebenenfalls nicht alle energetischen Niveaus angeregt werden können, so dass Effekte durch energetisch tief getrappte Ladungsträger unter Umständen nicht zur Wirkung kommen.

Der Deutungsansatz der für den Einfluss erhöhter Alterungsfeldstärken auf die Relaxationszeitkonstante τ_1 möglichen Ursachen kann durch die in den beiden anderen Diagrammen in Bild 4.6 gezeigten Resultate vertieft werden, da im Bereich der Relaxationszeitkonstante τ_2 zumindest ansatzweise eine Unterteilung der Ergebnisse bezüglich eingetretener Durchschlagentwicklungen möglich ist. Diese Abgrenzung voneinander ist bei langsamen Relaxationsvorgängen hingegen nicht mehr möglich.

Da sich beanspruchungsabhängige Veränderungen der Materialstruktur in Form von Modifikationen im Bereich der Grenzflächenpolarisation äußern können, ist bei den in Bild 4.6 dargestellten Ergebnissen eine Auswirkung thermischer Fluktuationen infolge von thermodynamischen Vorgängen [Parpal1997, Sayers2000] möglich, die durch hohe Feldbeanspruchungen verursacht werden können. Die daraus resultierenden, örtlich begrenzten Umwandlungen der Polymormorphologie können zu unterschiedlichen Grenzflächenbildungen im Isolierstoffvolumen führen und somit Veränderungen im Depolarisationsverhalten bewirken.

Im Weiteren sind nach [Meunier2000] chemische und physikalische „traps“ in Makromolekülen vorhanden, die verschiedene energetische Niveaus besitzen. Daher ist im Fall erhöhter elektrischer Wechselfeldbeanspruchungen eine Beeinflussung der lokalisierten physikalischen Zustände möglich, da die für sie ursächlichen Konformationsdefekte durch die Energiezufuhr

mit großer Wahrscheinlichkeit verändert werden. Als Folge davon ist eine Verschiebung des energetischen Anregungspotenzials der physikalischen „traps“ zu erwarten. Eine Abhängigkeit der ermittelten Relaxationszeitkonstanten von der Alterungsfeldstärke ist offensichtlich nur bei τ_1 festzustellen, da die beanspruchungsabhängigen Veränderungen mikroskopischer Grenzflächenpolarisationen und Konformationsdefekte infolge fehlender thermischer Einwirkung vermutlich auf Domänen geringer energetischer Tiefe beschränkt bleiben. Allerdings wurde die Unterteilung in energetisch tiefe und flache lokalisierte Zustände in der Literatur verhältnismäßig grob vorgenommen und ist auch von Versuchsbedingungen abhängig (z. B. in [Bauser1972]). Daher ist der allgemein diskutierte energetische Abstand vom Leitungsband von 1 eV als Grenzwert nicht absolut zu betrachten, sondern es sollten eher die relativen Unterschiede verschiedener Niveaus zueinander bei energetischen Betrachtungen berücksichtigt werden.

Im Rahmen der Ergebnisdiskussion sollte auch beachtet werden, dass mögliche Effekte, die vom Durchschlagvorgang herrühren, zu einer Beeinflussung des Relaxationsverhaltens führen könnten. Eine Abschätzung diesbezüglich ist jedoch auf der Basis der vorliegenden Resultate schwierig vorzunehmen, so dass dafür gezielte Ergänzungsuntersuchungen erforderlich sind.

Im Folgenden wird nun der Einfluss der Alterungstemperatur auf die Relaxationszeitkonstanten $\tau_{1...3}$ nach elektrischer und thermischer Vorbeanspruchung diskutiert. Eine entsprechende graphische Darstellung der ausgewerteten Ergebnisse findet sich dazu in Bild 4.7, wobei die Alterungsfeldstärke 13,1 kV/mm betrug und eine Versuchsdauer von 5000 h realisiert wurde. Dem Bild kann entnommen werden, dass eine Erhöhung der Alterungstemperatur von 20 °C auf 50 °C eine Verminderung von τ_1 verursacht. Eine weitere Steigerung der thermischen Beanspruchung auf 130 °C äußert sich in einem stetigen Anstieg von τ_1 . Als Erklärung für diese beiden unterschiedlichen Trendbereiche sind mehrere Gründe zu erörtern. Moderater thermischer Stress bewirkt in teilkristallinem Polyethylen eine Nachkristallisation, die als Erhöhung der Materialdichte aufgefasst werden kann. Der Beitrag an der gesamten Materialkristallisation ist aufgrund des Fertigungsprozesses jedoch begrenzt. Zudem ist infolge der thermischen Energiezufuhr auch eine Nachvernetzung entlang langer Seitenketten der Molekülstruktur an den vorhandenen Kurzkettenverzweigungen zu erwarten (vgl. Bild 4.22), so dass demzufolge geringere Wahrscheinlichkeiten für die Polarisation von Molekülen im freien Volumen vorliegen. Für weitere Anmerkungen hinsichtlich des freien Volumens wird an dieser Stelle auf Kapitel 1.2.2 verwiesen.

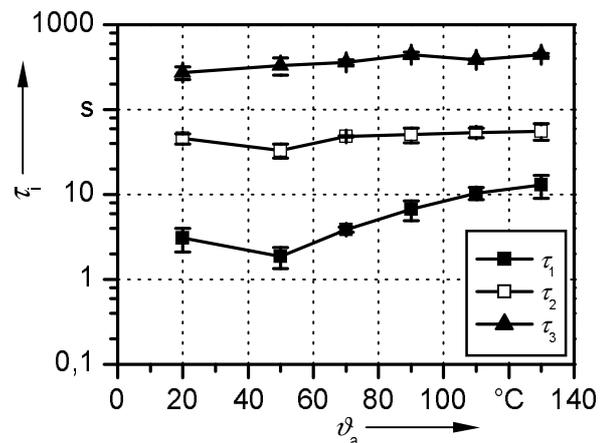


Bild 4.7: Relaxationszeitkonstanten τ_i gealterter VPE-Kabelproben in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a ($E_a = 13,1$ kV/mm; $t_a = 5000$ h)

Im Bereich der Zunahme von τ_1 mit steigenden Alterungstemperaturen ist die sich bei höheren Temperaturen einstellende Abnahme des Kristallinitätsgrades eine wesentliche Voraussetzung für den beobachteten Trend. Da somit die infolge der gleichzeitig einwirkenden elektrischen Beanspruchung in den Isolierstoff injizierten Ladungsträger aufgrund des größeren freien Volu-

mens leichter an geeignete „traps“ größerer energetischer Tiefe gelangen können, verschieben sich die entsprechenden Relaxationsvorgänge hin zu etwas größeren Zeitwerten. Diese Tendenz äußert sich in der Form nicht bei rein thermischer Materialbeanspruchung, wie der oberen Darstellung in Bild 4.9 entnommen werden kann. Insofern ist bei gleichzeitiger elektrischer und thermischer Alterungsbeanspruchung von Isolierstoffen aus VPE die Relaxationszeitkonstante τ_1 als möglicher geeigneter Kennwert für Zustandsbeschreibungen zu beachten.

Demgegenüber ergibt sich aus der Betrachtung des korrespondierenden Verlaufs der Relaxationszeitkonstante τ_2 keine charakteristische Temperaturabhängigkeit der Zeitamplitude. Es wird daher an dieser Stelle auf die Diskussion der Resultate nach separater thermischer Alterung verwiesen, da dort eine Beeinflussung von τ_2 durch die Beanspruchungstemperatur zu beobachten ist.

Für die Relaxationszeitkonstante τ_3 kann hingegen festgestellt werden, dass eine kontinuierliche Zunahme der Zeitamplituden mit ansteigenden Alterungstemperaturen auftritt. Dies deutet darauf hin, dass auch die Relaxationszeitkonstante τ_3 von Effekten beeinflusst wird, die sich auf beanspruchungsabhängige Modifikationen der Polymerstruktur zurückführen lassen. Dabei ist jedoch scheinbar für einen Anstieg der Zeitkonstante, wie im Fall von τ_1 , neben thermischem Stress auch eine elektrische Wechselfeldbeanspruchung erforderlich, da sich dieser Trend bei rein thermischer Beanspruchung nicht in der Art äußert (s. Bild 4.9). Folglich müssen gleichfalls Effekte im Ladungsträgerverhalten eine Rolle spielen. Diese können bisweilen thermisch aktiviert sein, so dass vermutlich von Schwellwerterscheinungen auszugehen ist.

Hinsichtlich der Abhängigkeiten charakteristischer Relaxationszeitkonstanten $\tau_{1...3}$ von den applizierten Vorbeanspruchungen bei VPE-isolierten Modellkabeln verdeutlichen die in Bild 4.7 dargestellten Ergebnisse, dass eine Separierung möglicher Ursachen aufgrund von komplexen Wechselwirkungen zwischen elektrisch und thermisch verursachten Veränderungen in der Materialmorphologie sowie im Ladungsträger- und Polarisationsverhalten des Isolierstoffes wesentlich erschwert wird. Diese Feststellung wird durch die Tatsache gestützt, dass eine Trennung bestimmter Vorgänge voneinander oftmals erst möglich ist, wenn bestimmte beanspruchungsabhängige Schwellwertbereiche überschritten und ausreichend sensitive Messverfahren eingesetzt wurden. Weiterhin wird eine vollständige Abgrenzung der verantwortlichen Relaxationsvorgänge durch die Tatsache beeinträchtigt, dass die gesamten Ladungstransport- und Polarisationsprozesse in Polyethylen als dynamische Vorgänge und nicht als stationäre Abläufe zu betrachten sind [Brehmer1981]. Die am Stromfluss beteiligten Ladungsträger befinden sich nach *Brehmer* nicht im thermodynamischen Gleichgewicht, da die Ladungsträgerbeweglichkeit in Polyethylen wesentlich durch interstitielle Zonen zwischen amorphen und kristallinen Bereichen bestimmt wird. Damit ist prinzipiell eine Abhängigkeit von äußeren Beanspruchungsgrößen gegeben, die die Materialmorphologie beeinflussen.

Zur weiteren Bewertung des Einflusses verschiedener elektrischer und thermischer Alterungsparameterkombinationen auf das Verhalten charakteristischer Relaxationszeitkonstanten $\tau_{1...3}$ sind in Bild 4.8 jeweils für unterschiedliche Alterungstemperaturen zwischen 20 °C und 90 °C separiert die ermittelten Zeitwerte in kombinierter Abhängigkeit von den jeweiligen Alterungsfeldstärken und -zeiten abgebildet. Im Fall rein elektrischer Vorbeanspruchung der VPE-Kabelproben zeigt sich zunächst eine Abhängigkeit von τ_1 von der Höhe der applizierten Wechselfeldbeanspruchung. Eine höhere Alterungsfeldstärke führt dabei zu größeren Werten für τ_1 .

Diese Feststellung ist vorerst auf den untersuchten Zeitbereich bis 100 h zu beschränken, da bei den mit 5000 h deutlich länger beanspruchten Probenkollektiven eine Abnahme der Ladungsträgerdichte nicht auszuschließen ist. Deren Reduktion kann allerdings durch Ladungsträgerinjektionen gegebenenfalls überlagert werden, so dass dieser Effekt bei dem hier verwendeten Verfahren nicht mehr sichtbar ist. Dazu sind jedoch ausreichend hohe elektrische Feldstärken erforderlich. Finden aufgrund von vergleichsweise geringen elektrischen Beanspruchungen keine Injektionsvorgänge statt, so ist vornehmlich von ursächlichen mikroskopischen Grenzflächenpolarisationen im Bereich geringer energetischer Tiefen auszugehen, da wesentliche Morphologiemodifikationen infolge der fehlenden thermischen Aktivierung nicht zu erwarten sind.

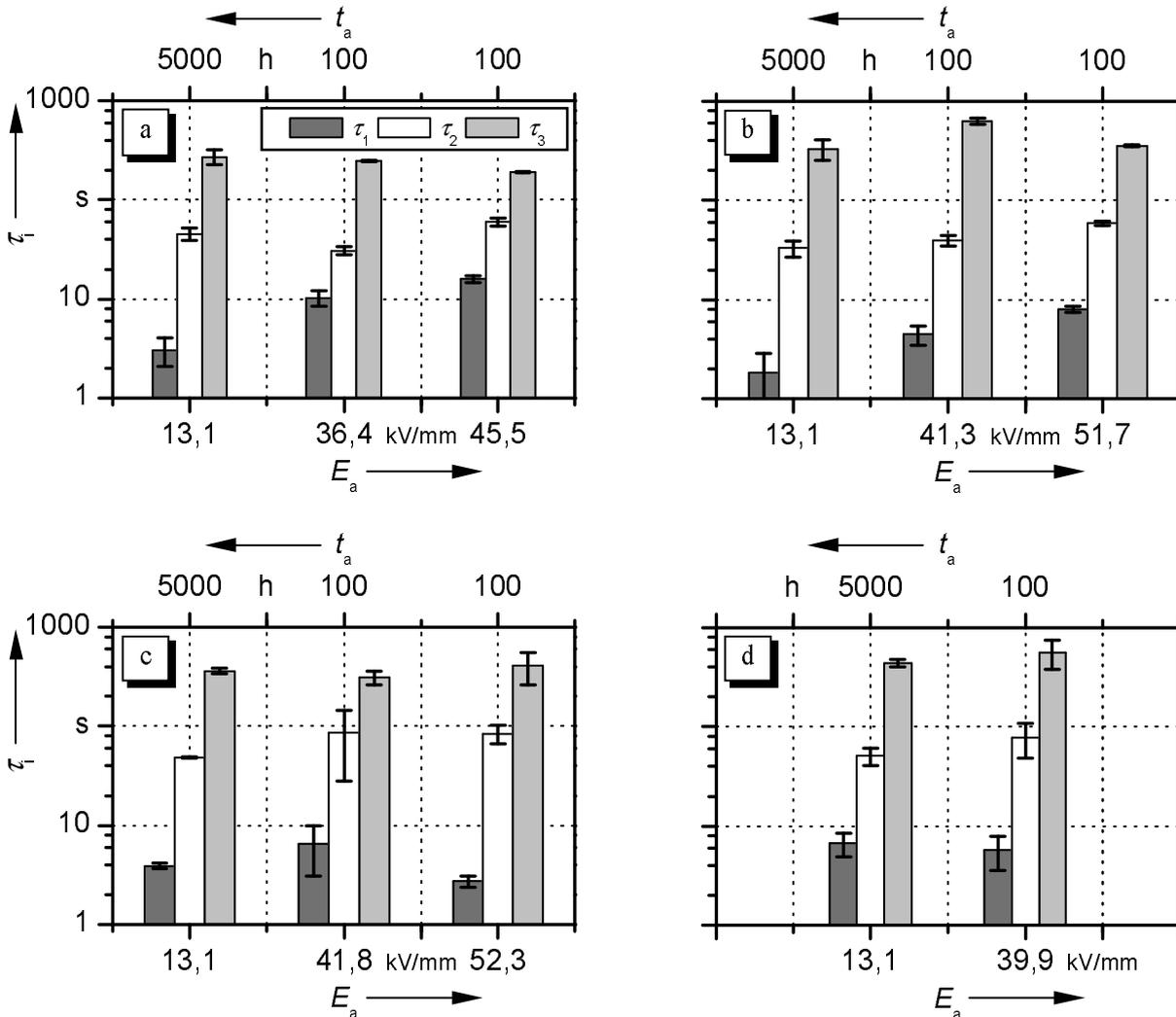


Bild 4.8: Relaxationszeitkonstanten τ_i gealterter VPE-Kabelproben in Abhängigkeit von der Alterungsfeldstärke E_a und der Alterungsdauer t_a

- a) $\vartheta_a = 20^\circ\text{C}$ b) $\vartheta_a = 50^\circ\text{C}$
c) $\vartheta_a = 70^\circ\text{C}$ d) $\vartheta_a = 90^\circ\text{C}$

Eine weitere Betrachtung der Ergebnisse für die Relaxationszeitkonstante τ_1 nach Beanspruchung mit einer Alterungstemperatur von 50°C lässt keine bemerkenswerte Änderung des zuvor konstatierten Trends erkennen. Allerdings ist infolge einer weiteren Steigerung des Temperaturniveaus während der Vorbeanspruchung eine Abwandlung dieser Tendenz auszumachen (s. Bild 4.8 c). Aufgrund höherer Alterungstemperaturen steigt die Wahrscheinlichkeit für Modi-

fikationen der molekularen Materialstruktur an. Da in diesem Fall die Temperaturen noch unterhalb des Bereiches der Kristallitschmelztemperatur liegen, ist nur mit moderaten Reorganisationen zu rechnen. Trotzdem zeigt sich z. B. anhand der in Bild 4.8 d) dargestellten Ergebnisse, dass der noch bei rein elektrischer Alterungsbeanspruchung für geringe Zeitkonstanten ursächliche Einfluss einer Abnahme der Ladungsträgerdichte nach längerer Wechselfeldbeanspruchung nun bei deutlich höheren Alterungstemperaturen nicht mehr zu erkennen ist. Im Vergleich mit den Resultaten nach ausschließlich elektrischer Vorbeanspruchung steigt der entsprechende Wert für τ_1 nach wesentlich längerer Alterungsdauer an. Durch die thermisch bedingten Veränderungen innerhalb der Molekülstruktur des Isolierstoffes wird bei moderater Feldeinwirkung über längere Zeiten ein ähnliches Relaxationsniveau erreicht wie nach deutlich kürzerer Beanspruchung bei höheren Feldstärken. Weiterhin sind mit der Temperatureinwirkung Reduktionen innerer mechanischer Spannungen innerhalb des Isolierstoffvolumens verbunden, wenngleich zu berücksichtigen ist, dass Rekristallisationsvorgänge oder Aufschmelzerscheinungen kristalliner Zonen in teilkristallinen Polymeren mit einer thermischen Materialausdehnung verbunden sind, durch die zusätzliche mechanische Beanspruchungen entstehen können [Boggs1998]. Das Aufschmelzen kristalliner Domänen erstreckt sich über eine Temperaturzone im Bereich der Kristallitschmelztemperatur, so dass zusätzliche mechanische Materialspannungen infolge höherer Temperaturen im Rahmen dieser Ergebnisdiskussion sehr wahrscheinlich keine wesentliche Rolle spielen.

Den in Bild 4.8 illustrierten Resultaten kann darüber hinaus entnommen werden, dass die Werte der Relaxationszeitkonstante τ_2 keine offensichtliche Abhängigkeit von der applizierten Alterungsbeanspruchung aufweisen. Eine Feststellung von beanspruchungsbedingten Tendenzen kann allerdings aufgrund von möglichen Überlagerungseffekten mehrerer Vorgänge wesentlich erschwert werden. Es ist in diesem Zusammenhang anzumerken, dass auf der vorliegenden Datenbasis eine Ergebniserörterung, wie bereits auch bei den korrespondierenden Messwerten aus Bild 4.7, nicht möglich ist. Eine denkbare Erklärung für die in diesem Problemumfeld zu diskutierenden Ursachen für das Verhalten der Relaxationszeitkonstante τ_2 kann jedoch in der Existenz von Fremdmolekülen im Isolierstoffvolumen liegen. Depolarisationsströme können prinzipiell Anteile durch Grenzflächenpolarisationseffekte an von Antioxidantien oder Vernetzerspaltprodukten herrührenden Fremdmolekülen enthalten. Da der Verbleib dieser Bestandteile im Isolierstoff von der Temperatur abhängt, sind für das Erkennen von Vorgängen, die auf diese Materialingredienten zurückgeführt werden können, aufgrund der guten Temperaturstabilität von VPE-Isolierungen für Hochspannungskabelanwendungen hohe thermische Beanspruchungen über ausgedehnte Zeiträume notwendig. Ist das Temperaturniveau während der Alterungsbeanspruchung nur moderat, äußern sich Modifikationen im Fremdmolekülverhalten vielfach nicht eindeutig. Darüber hinaus kann deren Depolarisationsverhalten durch Effekte von zusätzlichen elektrischen Vorbeanspruchungen beeinflusst werden.

Mit Blick auf die in Bild 4.7 zusammengefassten Ergebnisse nach verschiedenen elektrischen und thermischen Alterungsbeanspruchungen zeigt das Verhalten von τ_3 in Bild 4.8 eine leichte Tendenz hin zu größeren Werten nach Vorbeanspruchungen mit höherer Temperatur. Dieser Trend äußert sich sowohl bei moderater Wechselfeldeinwirkung über längere Zeiträume als auch nach vergleichsweise kurzer Vorbeanspruchung mit deutlich höheren Feldstärken. Demzufolge ist davon auszugehen, dass ein vorherrschender Einfluss von höheren Temperaturbeanspruchungen auf die Relaxationszeitkonstante τ_3 vorliegt und Einwirkungen, die von elektrischen Wechselfeldbeanspruchungen herrühren, erst oberhalb bestimmter Schwellwertbereiche in der Analyse

des isothermen Depolarisationsverhaltens von VPE-isolierten Modellkabeln ausgemacht werden können. Eine genaue Angabe hinsichtlich eines Schwellwertes ist an dieser Stelle nicht möglich, da anzunehmen ist, dass komplexe Wechselwirkungen zwischen den elektrischen und thermischen Beanspruchungen zu Überlagerungseffekten in der Materialrelaxation führen.

Die im Vorangegangenen registrierte Zunahme von τ_3 infolge von höheren Alterungstemperaturen findet eine Analogie im zuvor diskutierten Verhalten von τ_1 . Daraus resultiert, dass ähnliche

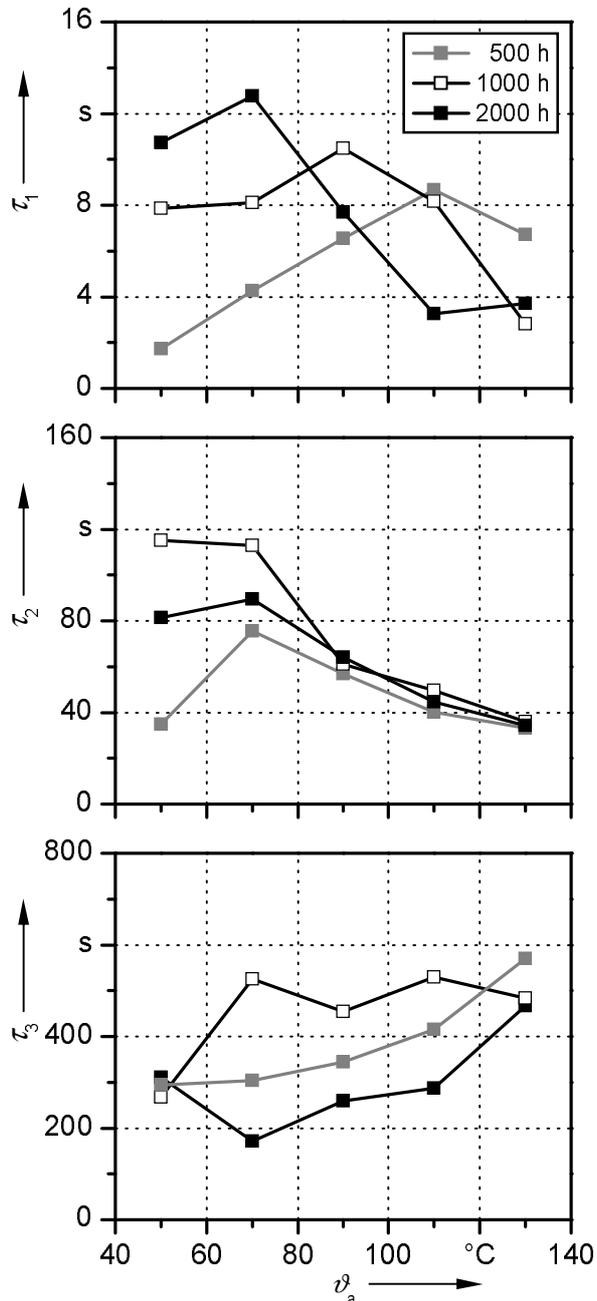


Bild 4.9: Relaxationszeitkonstanten $\tau_{1,2,3}$ gealterter VPE-Kabelproben in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a mit der Alterungsdauer als Parameter ($E_a = 0$ kV/mm)

Mechanismen wirksam sind, die in energetischer Hinsicht durch unterschiedliche Aktivierungsvorgänge voneinander abgegrenzt werden. Höhere Werte der Relaxationszeitkonstanten τ_1 und τ_3 ergeben sich jedoch offensichtlich nur, wenn neben thermischem Stress auch geeignete Kombinationen aus entweder längerer Beanspruchung mit mäßiger Feldeinwirkung oder für kürzere Zeiten applizierte höhere Wechsellspannungsbeanspruchungen aktiv sind, wie anhand eines Vergleiches der Resultate aus Bild 4.8 mit den in Bild 4.9 dargestellten Ergebnissen erkennbar ist. Folglich sind auch beanspruchungsabhängige Mechanismen im Ladungsträgertransport- und -speicherungsverhalten hinsichtlich des Depolarisationsverhaltens verlustarmer Isolierstoffe von Bedeutung. Bisweilen sind dabei auch thermisch aktivierte Vorgänge relevant, so dass aller Voraussicht nach von Schwellwerterscheinungen auszugehen ist.

Das Unterkapitel zum Verhalten charakteristischer Zeitkennwerte von Depolarisationsstromverläufen abschließend werden nun die Ergebnisse nach einer ausschließlich thermischen Vorbeanspruchung diskutiert, wobei zeitabhängige Veränderungen im Fokus stehen. Dazu sind in Bild 4.9 die entsprechenden Resultate bis zu einer maximalen Alterungsdauer von 2000 h wiedergegeben.

Der Graphik kann entnommen werden, dass die Verläufe der Relaxationszeitkonstante τ_1 für alle dargestellten Beanspruchungszeiten ein Maximum aufweisen, das mit zunehmender Einwirkzeit hin zu niedrigeren Alterungstemperaturen verschoben wird und in der Amplitude ansteigt. Prinzipiell kann für eine temperaturverursachte Zunahme von τ_1 der

Abbau herstellungsinhärenter innerer mechanischer Spannungen angesehen werden. Dabei verlaufen die Entspannungsvorgänge auf verschiedenen Temperaturniveaus unterschiedlich schnell ab, wodurch sich das divergente Anstiegsverhalten von τ_1 sowie die Verschiebung maximaler Zeitwerte ergeben. Es ist bei der bisherigen Diskussion möglicher Ursachen für die beobachteten Verläufe von τ_1 zu berücksichtigen, dass aufgrund des im Isolierstoffvolumen vorhandenen Temperaturgradienten während der Beanspruchung jeweils unterschiedliche Anteile verschiedener Temperaturniveaus in ihrer Wirkung auf das Relaxationsverhalten interferieren. Dabei bilden sich entsprechende Überlagerungserscheinungen bevorzugt bei über längere Zeiträume einwirkenden höheren Temperaturen aus.

Eine Reduktion der Werte für τ_1 infolge höherer Temperaturbeanspruchungen hingegen ist aufgrund von Nachkristallisations- und -vernetzungs Vorgängen innerhalb der teilkristallinen Materialstruktur zu erwarten, da dadurch das für Grenzflächenpolarisationen ursächliche Gefüge modifiziert wird. Mit zunehmender Beanspruchungsdauer steigt die Wahrscheinlichkeit an, dass relevante Effekte durch Grenzflächenpolarisationen abnehmen. Ausgedehnte Alterungsphasen auf einem hohen Temperaturlevel leiten jedoch den Verbrauch der dem Isolierstoff zugesetzten Antioxidantien ein, so dass nach einem entsprechenden Stoffumsatz Oxidationserscheinungen in Form von vermehrten Carbonylgruppen zu erwarten sind. Infolgedessen werden durch die entstandenen Molekülverbindungen Polarisationsvorgänge forciert, so dass die Wahrscheinlichkeit für langsamere Relaxationen ansteigt. Eine Indikation dieses Verhaltens findet sich in ansteigenden Zeitwerten für τ_1 (s. Bild 4.10). Die Verschiebung hin zu langsameren Depolarisationserscheinungen infolge längerer Beanspruchung mit höheren Temperaturen zeigt sich beispielsweise auch im frequenzabhängigen Verlustfaktorverhalten.

Darüber hinaus ist bei teilkristallinen Materialien unter Einwirkung hoher Temperaturen aufgrund von thermischen Bewegungen einzelner Molekülsegmente eine Veränderung des freien Volumens zu erwarten. Allerdings liegt dabei eine hindernde Beeinflussung durch Vernetzungsstrukturen vor, so dass die entsprechenden Modifikationen im Fall von PE nur begrenzt auftreten. Trotzdem ist infolge der Variation des freien Volumens mit geringfügig erleichterten Bedingungen für Transportvorgänge niedermolekularer Substanzen im Vergleich zu Verhältnissen bei Normaltemperatur zu rechnen [Krebs1999]. Daher können sich bei ausreichend hohen und lange einwirkenden Temperaturen tendenziell höhere Werte für die Relaxationszeitkonstante τ_1 ergeben, die ursächlich von Migrationsprozessen niedermolekularer Stoffen aus den Leitschichtmaterialien hervorgerufen werden [Bulinski1998].

Hinsichtlich der Werte der Relaxationszeitkonstanten τ_2 ist anhand der Darstellung in Bild 4.9 anzumerken, dass thermischer Stress über die untersuchten Beanspruchungszeiten 500 h, 1000 h und 2000 h zu einer, insbesondere bei hohen Temperaturen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur und darüber, ähnlichen abfallenden Tendenz führt. Daraus ergibt sich die Vermutung, dass das Depolarisationsverhalten der untersuchten VPE-isolierten Modellkabel in diesem Zeitbereich vorwiegend von flüchtigen Bestandteilen, wie z. B. Vernetzerspaltprodukten, determiniert wird. Infolgedessen kann bei längeren Einwirkzeiten zunächst mit einer Fortsetzung dieses Trends gerechnet werden, der jedoch bei nahezu vollständigem Stoffverbrauch in eine Stabilisierung der Zeitkonstante auf einem ähnlichen Niveau wechselt. In der die entsprechenden Resultate zusammenfassenden Abbildung in Bild 4.10 zeigt sich, dass eine Ausdehnung der Alterungszeit auf 5000 h zu ähnlichen Werten für τ_2 im Bereich von etwa 40 s nach Beanspruchungen mit 90 °C bzw. 110 °C führt.

Die Relaxationszeitkonstante τ_3 weist bezüglich einer Beeinflussung durch unterschiedliche thermische und zeitliche Vorbeanspruchungen keine einheitliche Tendenz auf, wie Bild 4.9 zeigt. Diese Erscheinung wurde bereits bei der Diskussion der korrespondierenden Ergebnisse aus Bild 4.7 umrissen, wo ein stetiger moderater Anstieg der Werte für τ_3 aufgrund von gleichzeitiger elektrischer und thermischer Einwirkung festgestellt wurde.

Die Diskussion hinsichtlich des Einflusses verschiedener Kombinationen der Alterungstemperatur, der -feldstärke und der -dauer auf das Verhalten von charakteristischen Kennwerten aus im Zeitbereich ermittelten Depolarisationsstromverläufen zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die Relaxationszeitkonstanten τ_1 und τ_3 in Abhängigkeit von den Beanspruchungsparametern ein Trendverhalten aufweisen. Dabei wurde jedoch deutlich, dass für das Auftreten einzelner Vorgänge erst bestimmte Voraussetzungen durch von anderen Beanspruchungen hervorgerufenen Auswirkungen geschaffen bzw. eingeleitet werden müssen. In diesem Zusammenhang erlangen Ansätze, die auf so genannten Schwellwerttheorien basieren, zunehmend an Bedeutung. Allerdings ist die Bestimmung relevanter Schwellwertbereiche sehr komplex und daher oftmals nur möglich, wenn die Materialbeanspruchungen zumindest ansatzweise im Umfeld von Extrembelastungen liegen. Dies ist bei teilkristallinem VPE vor allem in thermischer Hinsicht der Fall. Dort sind Temperaturen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur erforderlich, um Veränderungen des Materialgefüges hervorzurufen. Deren Auswirkungen können dann durch eine Analyse von isothermen Depolarisationsströmen untersucht werden.

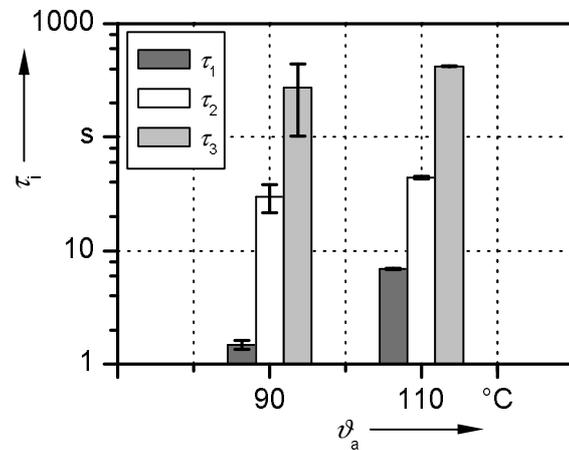


Bild 4.10: Relaxationszeitkonstanten τ_i thermisch gealterter VPE-Kabelproben in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a ($t_a = 5000$ h)

4.3.2 Einfluss der Umgebungsbedingungen

Die Untersuchungen hinsichtlich des isothermen Depolarisationsverhaltens unterschiedlich laborgealterter VPE-isolierter Modellkabelproben wurden unter Umgebungsbedingungen durchgeführt. Da diese am Versuchsplatz geringfügig variierten, wurde eine Überprüfung des Einflusses der Umgebungsfeuchte und -temperatur auf den Oberflächenleckstrom I_{OL} (vgl. Bild 3.13) in Abhängigkeit von der anliegenden Gleichspannung U vorgenommen. Die Messungen der Oberflächenleckströme erfolgten entsprechend der Versuchsbeschreibung in Kapitel 3.3.1.2.

Aus der Literatur ist bekannt, dass Oberflächenwiderstände von festen Isolierstoffen bei Kontakt mit Umgebungsluft von dessen relativer Feuchte beeinflusst werden [Das-Gupta1992]. Zusätzlich ergibt sich die relative Luftfeuchte in Abhängigkeit von der Temperatur [Kahle1989]. In der Regel stellt sich bei niedrigen relativen Luftfeuchten ein weitestgehend konstanter Oberflächenwiderstand ein. Im Bereich hoher relativer Luftfeuchten ist jedoch mit einem Leitfähigkeitsanstieg der Isolierstoffoberfläche zu rechnen. Es wird bei den für die Oberflächenleitfähigkeit von Polymeren ursächlichen Mechanismen primär von ionischen Abläufen ausgegangen, wobei infolge hoher Anforderungen an die erforderliche Messtechnik und komplexer Wechselwirkungen

zwischen elektrischen Feldern, Oberflächenpotenzialen und Materialzuständen weiterer systematischer Untersuchungsbedarf als notwendig angesehen wird [Das-Gupta1992].

Bild 4.11 zeigt die zu diesem Themenkomplex ermittelten Ergebnisse des Oberflächenleckstromes I_{OL} in Abhängigkeit von der anliegenden Gleichspannung U . Der oberen Graphik kann entnommen werden, dass bei einer Spannung von 1 kV nur die Ströme für Versuchstemperaturen von 29 °C und höher oberhalb des auflösbaren

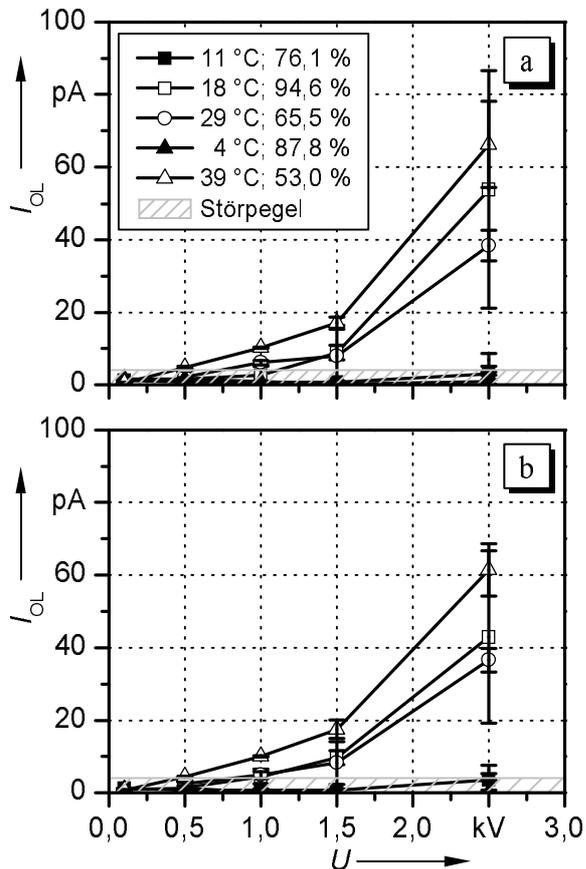


Bild 4.11: Oberflächenleckstrom I_{OL} einer Referenzkabelprobe bei verschiedenen Umgebungsbedingungen in Abhängigkeit von der Spannung U
a) nach 60 s
b) nach 120 s

Störpegels der Messanordnung liegen. Eine Steigerung der Versuchsspannung auf höhere Werte verursacht größere Oberflächenleckströme für geringere Temperaturen als zuvor erwähnt. Diese Beobachtung kann allerdings auch durch die bei 18 °C hohe relative Luftfeuchte überlagert sein, da hohe relative Feuchten allgemein eine Reduktion des Oberflächenwiderstandes verursachen. Als Ursache für dieses Verhalten wird die Anlagerung von Wassermolekülen betrachtet, die sogar bei vorwiegend unpolaren Kunststoffen zu beobachten ist [Németh2003].

Ein Vergleich der beiden Diagramme in Bild 4.11 nach Wartezeiten von 60 s bzw. 120 s verdeutlicht, dass sich bereits nach einer Zeit von 60 s annähernd stationäre Stromwerte einstellen. Eine signifikante Beeinflussung der Messergebnisse nach 60 s durch den mit zunehmender Wartezeit nach dem Einschalten der Messspannung abnehmenden Oberflächenwiderstand ist demnach nicht zu erwarten. Somit kann anhand der vorliegenden Versuchsergebnisse festgestellt werden, dass die gewählten Messparameter zur Aufnahme von isothermen Depolarisationsströmen unter Umgebungsbedingungen (s. Kapitel 3.3.1.1) im Rahmen der vorliegenden Messgenauigkeit nicht unzulässig von ungünstigen atmosphärischen

Konditionen verfälscht werden. Diese Beobachtung wird durch die Resultate einer zusätzlichen Auswertung der entsprechenden Werte des spezifischen Oberflächenwiderstandes σ verifiziert. Unter Verwendung des Ausdrucks $\sigma = K \cdot (U / I_{OL})$ mit dem aus der Elektrodengeometrie ermittelbaren Korrekturfaktor K [VDE 0303/30, Németh2003] wurden dazu die in Bild 4.12 illustrierten Werte für σ bestimmt.

Für die vorliegende Anordnung wurde ein Korrekturfaktor von $K = 2,179$ errechnet. Der Darstellung kann entnommen werden, dass sich für Zeiten ab etwa 60 s annähernd stationäre Verhältnisse hinsichtlich der Wartezeit nach Anlegen der Messspannung einstellen. Weiterhin ist zu beobachten, dass die im gesamten Untersuchungsbereich erzielten Ergebnisse für σ zwischen

$10^{13} \Omega$ und $10^{16} \Omega$ liegen. Es ergibt sich damit eine gute Übereinstimmung mit den in [Németh2003] präsentierten Werten. Dort wird in diesem Zusammenhang auf den Einfluss der Kontaktierungsart zwischen Probekörper und Elektrode hinsichtlich des spezifischen Oberflächenwiderstandes hingewiesen. Da in dieser Arbeit ein Anschluss der Messverbindungen über die äußere Leitschicht erfolgte, ist eine Beeinflussung in Richtung größerer Werte zu erwarten, die jedoch im in [Németh2003] angegebenen Bereich von etwa $10^{13} \Omega$ und $10^{17} \Omega$ liegt. Darüber hinaus zeigt Bild 4.12 für die Parameter 39°C und 53% relative Feuchte ansatzweise den bekannten Effekt einer Zunahme der Oberflächenleitfähigkeit mit höheren Feldstärken. Dabei ist auch von einer Überlagerung durch thermisch aktivierte Prozessinitierungen auszugehen. Für die anderen Kombinationen der Umgebungsparameter stellt sich erst ab einer Spannung von etwa $1,5 \text{ kV}$ ein leichter feldabhängiger Einfluss auf den spezifischen Oberflächenwiderstand ein.

Insgesamt ist auf der Basis der erzielten Resultate zur Kenntnis zu nehmen, dass die Umgebungstemperatur einen im Vergleich zur relativen Luftfeuchte größeren Einfluss auf den spezifischen Oberflächenwiderstand ausübt.

Sie sollte daher nicht zu hoch sein und wenig variieren. Ein möglicher Grenzwert könnte bei 25°C liegen. Weiterhin ergeben sich bei Messspannungen ab ca. $1,5 \text{ kV}$ für sehr hohe relative Feuchten über 90% und moderate Temperaturen im Bereich von etwa 18°C ebenfalls Anzeichen für unerwünschte Ableiterscheinungen auf der Isolierstoffoberfläche.

4.4 Thermisch stimuliertes Depolarisationsverhalten von VPE-isolierten Kabeln

Im Rahmen dieses Unterkapitels wird das thermisch stimulierte Depolarisationsverhalten von unterschiedlich vorbeanspruchten VPE-isolierten Modellkabeln beschrieben. Eine Erläuterung der verwendeten Versuchseinrichtung ist in Kapitel 3.3.2.1 angegeben, und die für die Bestimmung charakteristischer Kennwerte erforderlichen Auswertungsschritte finden sich in Kapitel 3.3.2.3. Es wird zunächst auf die Auswirkungen verschiedener Alterungstemperaturen und -feldstärken bezüglich der im Rahmen dieser Arbeit verglichenen Parameter Aktivierungsenergie W_A , Fläche A_{Peak} unterhalb der TSD-Hüllkurve sowie Temperaturwert ϑ_{max} des TSD-Strommaximums eingegangen. Anschließend werden Effekte infolge unterschiedlicher Beanspruchungszeiten betrachtet, wobei sich aufgrund des vorhandenen begrenzten Kollektivumfangs teilweise Parametereinflüsse aus den einzelnen Abschnitten überschneiden können.

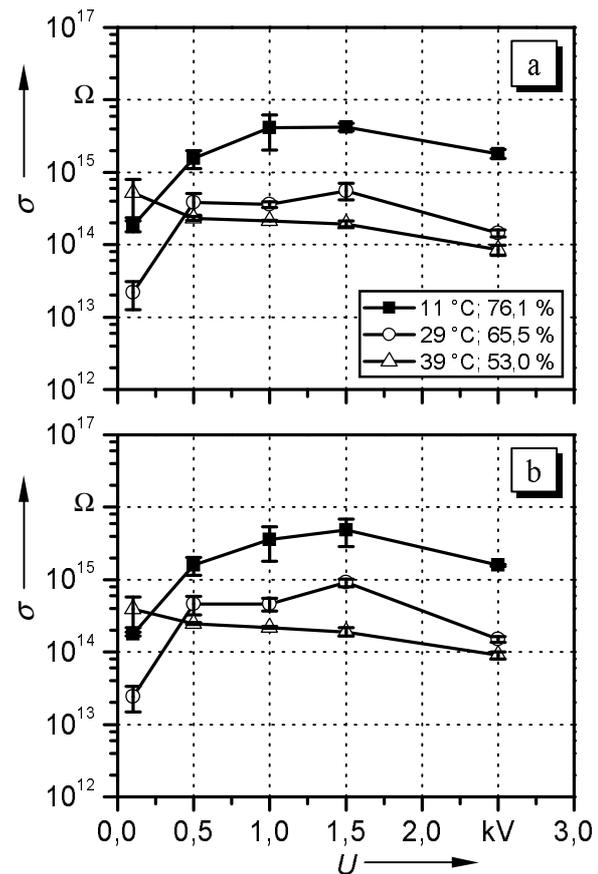


Bild 4.12: Spezifischer Oberflächenwiderstand σ einer Referenzkabelprobe bei verschiedenen Umgebungsbedingungen in Abhängigkeit von der Spannung U
a) nach 60 s
b) nach 120 s

4.4.1 Einfluss der Alterungstemperatur und der -feldstärke

In Bild 4.13 findet sich für unterschiedlich elektrisch und thermisch gealterte VPE-Modellkabel eine vergleichende Darstellung zum Einfluss der Alterungstemperatur auf die Aktivierungsenergie für rein thermische sowie gleichzeitige elektrische und thermische Vorbeanspruchungen. Die

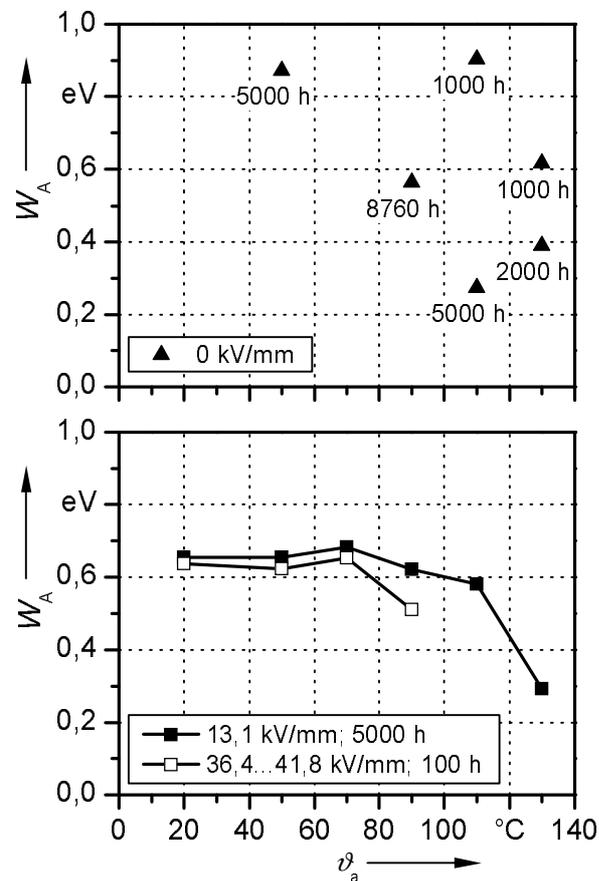


Bild 4.13: Aktivierungsenergien W_A von unterschiedlich gealterten VPE-Modellkabeln in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a

obere Graphik zeigt, dass im Fall ausschließlich thermischer Alterung eine Erhöhung der Alterungstemperatur zu einer Abnahme der Aktivierungsenergie führt. Dabei kann nach einer Beanspruchung mit 130°C über 1000 h ein ähnlicher Wert erreicht werden wie nach Applikation von 90°C über 8760 h. Da die untersuchten Temperatur- und Zeitbereiche im Sinne handhabbarer Alterungsprogramme durchaus weit gespannt sind, kann grundsätzlich ein deutlicher Einfluss der Alterungstemperatur auf die für thermisch stimulierte Depolarisationen charakteristische Aktivierungsenergie festgestellt werden. Als Ursache für die Abnahme von W_A nach entsprechender thermischer Alterung werden zusätzliche lokalisierte Zustände geringer Aktivierungsenergie betrachtet, die durch thermisch verursachte Veränderungen der Materialmorphologie entstehen [Schneider1996].

Darüber hinaus tendieren feste Isolierstoffe bei höheren Temperaturen verstärkt dazu, die „getrappten“ Ladungsträger an die angrenzenden Elektroden abzugeben [Blaise1995], da sich mit zunehmender Aufschmelzung der kristallinen Bereiche infolge hoher Temperaturen die energetische Lage von Elektronenzwischenplätzen hin zu niedrigeren Werten verschiebt [Olshausen1979]. Infolgedessen können bei thermisch beanspruchten Proben Polarisationsseffekte bei Gleichspannungseinwirkung deutlich weniger ausgeprägt sein, als bei thermisch unbehandelten Mustern [Blaise1995].

Eine Zusammenfassung über die verschiedenen Arten von energetisch lokalisierten Zuständen in PE findet sich in [Pietsch1992]. Dabei werden allgemein Carbonylgruppen, Doppelbindungen an Kettenenden, Vinylgruppen, Kristallitgrenzen sowie amorphe und kristalline Bereiche als Ursachen für „traps“ angesehen. Deren energetischer Abstand zum Leitungsband entspricht sowohl flachen als auch tiefen „traps“. Es ist in der Vergangenheit jedoch festgestellt worden, dass die Konzentration der lokalisierten Zustände in energetischer Hinsicht stark unterschiedlich ist. So werden in PE Dichten für flache und tiefe „traps“ von etwa 10^{18} cm^{-3} bzw. 10^{14} cm^{-3} angegeben [Patsch1990].

Im Vergleich zu den zuvor diskutierten Ergebnissen rein thermischer Vorbeanspruchung zeigt die untere Darstellung in Bild 4.13 den Einfluss der Alterungstemperatur bei unterschiedlichen Kombinationen der Alterungsfeldstärke und -dauer auf die Aktivierungsenergie. Dabei scheint bei elektrischer Beanspruchung mit 13,1 kV/mm über eine Dauer von 5000 h bis zu einer Alterungstemperatur von 90 °C keine wesentliche Beeinflussung der Aktivierungsenergie durch die Beanspruchungsparameter vorzuliegen. Erst bei Alterungstemperaturen von 110 °C und 130 °C wird eine Abnahme von W_A erkennbar. Diese Beobachtung deutet darauf hin, dass durch thermischen Stress im Bereich der Kristallitschmelztemperatur und darüber infolge der resultierenden Abnahme des Kristallinitätsgrades eine Reduktion der für Ladungsträgerspeicherungen vorzugsweise genutzten Grenzflächenbereiche zwischen amorphen und kristallinen Domänen zu erwarten ist. Dadurch verändert sich die statistische Verteilung energetisch lokalisierter Zustände infolgedessen Modifikationen im Leitfähigkeitsverhalten auftreten können. Anhand der Ergebnisse zeigt sich, dass eine Abnahme energetisch relevanter „trap“-Dichten durch hohe Alterungstemperaturen herbeigeführt wird, wodurch die Wahrscheinlichkeit von Ladungsträgertransporten aus lokalisierten Zuständen abnimmt und eine verminderte TSD-Aktivität beobachtet werden kann.

Weiterhin ist Bild 4.13 zu entnehmen, dass bei einer Alterungstemperatur von 110 °C durch eine zusätzliche moderate Wechselfeldbeanspruchung über 5000 h gegenüber ausschließlich thermischer Einwirkung ein Anstieg von W_A hervorgerufen wird. Diese Zunahme kann dahin gehend interpretiert werden, dass durch die thermisch bedingte Veränderung der inneren Materialstruktur die infolge der elektrischen Beanspruchung in das Dielektrikum eingebrachten Ladungsträger aufgrund des größeren freien Volumens mit höherer Wahrscheinlichkeit an geeignete „traps“ größerer energetischer Tiefe gelangen können. Dieser Ergebnistrend zeigte sich bereits bei der Diskussion charakteristischer Relaxationszeitkonstanten aus isothermen Depolarisationsstrommessungen in Bild 4.7.

Bei Beanspruchung mit deutlich höheren Alterungsfeldstärken von ca. 40 kV/mm über eine Dauer von 100 h ergeben sich vergleichbare Werte für die Aktivierungsenergien wie nach mäßigen Alterungen mit 13,1 kV/mm für 5000 h. Allerdings scheint die zuvor erörterte thermisch verursachte Abnahme von W_A für dieses Probenkollektiv schon bei geringeren Alterungstemperaturen einzutreten. Da aufgrund der kurzen Beanspruchungszeit von 100 h im Bereich leicht erhöhter Temperaturen

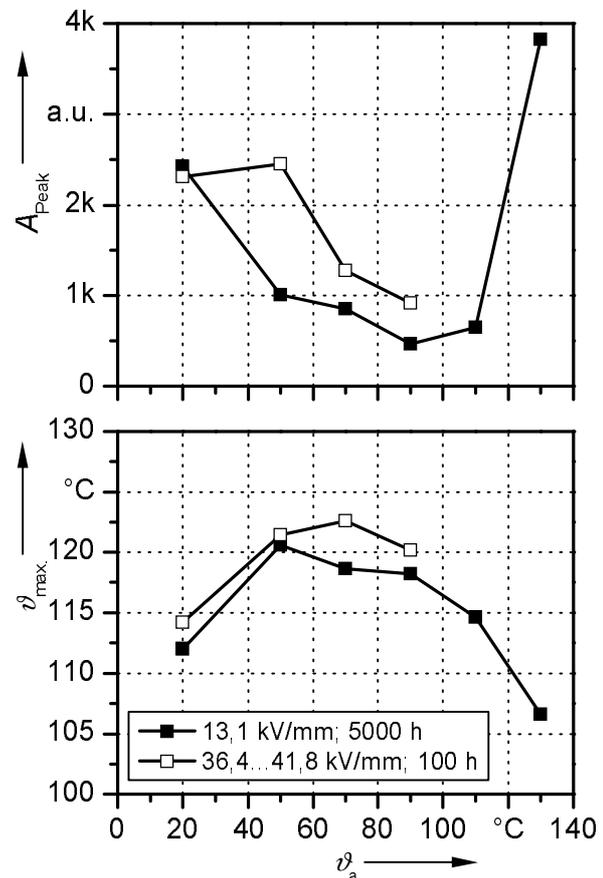


Bild 4.14: Fläche A_{Peak} unterhalb der TSD-Hüllkurve und Temperaturwert der maximalen TSD-Stromintensität j_{max} von verschiedenen beanspruchten VPE-Modellkabeln in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a

nicht von signifikanten morphologischen Materialveränderungen ausgegangen werden kann, müssen demnach ursächliche Vorgänge durch die hohen Wechselfeldbeanspruchungen ausgelöst werden. Durch ausreichend hohe elektrische Feldstärken können bei im Vergleich zu Durchschlaguntersuchungen längeren Einwirkzeiten lokale Energieverteilungen im Isolierstoffvolumen modifiziert werden (s. Kapitel 1.2.2). Dadurch können thermische Fluktuationen in vorwiegend amorphen Bereichen auftreten, infolgedessen örtlich begrenzte Veränderungen der Polymorphologie vorstellbar sind. Bei teilkristallinen Polymeren ist damit in der Regel eine Abnahme der interstitiellen Zonen zwischen amorphen und kristallinen Domänen verbunden, so dass eine Verminderung der Dichte geeigneter Ladungsträgerspeicherplätze eintritt. Zusätzlich nimmt mit höheren Alterungsfeldstärken auch die Wahrscheinlichkeit zu, dass „traps“ geringer energetischer Tiefe besetzt werden. Diese Tendenz hat sich auch anhand von Untersuchungen zum Einfluss struktureller Werkstoffparameter auf das Raumladungsverhalten von PE ergeben [Marsacq1995], wobei einer Reduktion des Kristallinitätsgrades eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für Ladungsspeicherungsprozesse eingeräumt wird. Es ist dabei jedoch zu berücksichtigen, dass eine entsprechende längerfristige Speicherung nicht automatisch erfolgen muss, da auch „detraping“-Vorgänge unmittelbar auftreten können.

In Bild 4.14 sind für zwei unterschiedlich elektrisch und thermisch vorbeanspruchte Probenkollektive die Verläufe der Fläche A_{Peak} unterhalb der TSD-Hüllkurve sowie der Temperatur ϑ_{max} des TSD-Strommaximums dargestellt. Für die Auswertungsgröße A_{Peak} ergibt sich mit zunehmender Alterungstemperatur für beide Kollektive zunächst eine abnehmende Tendenz. Bei Überschreitung der Kristallitschmelztemperatur zeigen die 5000 h gealterten Muster einen deutlichen Anstieg von A_{Peak} . Die Flächen unterhalb einer TSD-Hüllkurve werden allgemein als Vergleichsmaß für die aus der Probe freigesetzte Ladungsmenge betrachtet [Olshausen1979]. Dabei handelt es sich um Ladungen, die sich zum einen infolge der Vorbeanspruchungen im Isolierstoff befinden und zum anderen während der Formierphase in das Dielektrikum injiziert werden. Diese Vorgänge werden wesentlich durch die Materialmorphologie bestimmt, da dadurch die Dichte und die energetische Verteilung von „traps“ im Volumen teilkristalliner Polymere beeinflusst wird. Daher ist eine Abnahme der Fläche A_{Peak} im Temperaturbereich unterhalb der Kristallitschmelztemperatur vorwiegend auf den Abfluss „getrappter“ Ladungsträger in Richtung der Kontaktelektroden aufgrund von so genannten Ausheizeffekten zurückzuführen. Im Gegensatz dazu kann eine Vergrößerung der Fläche A_{Peak} durch zusätzliche Ladungsträgerspeicherplätze verursacht werden, die infolge der thermisch bedingten Zunahme amorpher Zonen leichter durch die Formierung besetzt werden können. Darüber hinaus kann auch durch den Anstieg der Carbonylgruppen (s. Bild 4.24) des mit 130 °C und 13,1 kV/mm für 5000 h gealterten Probenkollektivs ein zusätzliches Potenzial an Speicherplätzen entstehen.

Die durch eine ausreichend lange thermische Beanspruchung verursachten morphologischen Materialmodifikationen in teilkristallinen Polymeren äußern sich u. a. in einer Abnahme der Dichte von Ladungsträgerspeicherplätzen. Noch vorhandene „traps“ werden dann in zunehmendem Maße von Fremdmolekülen gebildet, die vorzugsweise in amorphen Bereichen des Materials zu finden sind. Dabei kann es sich um dem Isolierstoff beigefügte Antioxidantien handeln [Iida1987, Audouin1995] oder nach deren Verbrauch durch hohen thermischen Stress über ausgedehnte Zeiträume um niedermolekulare Reaktionsprodukte, die durch thermisch-oxidativen Polymerabbau entstehen [Krebs1999]. Der physikalische Verlust von Antioxidantien in VPE erscheint diffusionskontrolliert und ist daher vermutlich in vernetzten Materialstrukturen durch eine Barrierewirkung der Vernetzungen eingeschränkt. Jedoch sind mit abnehmendem Kristalli-

nitätsgrad höhere Diffusionskoeffizienten verbunden [Sheu1989], so dass auch mit erleichterten Diffusionsvorgängen von Fremdmolekülen gerechnet werden muss.

Weiterhin sind im unteren Diagramm in Bild 4.14 die entsprechenden Verläufe der Temperaturen eines TSD-Strommaximums von den beiden unterschiedlich vorbeanspruchten Alterungskollektiven zusammengefasst. Die in der Literatur oft auch als „peak“-Temperatur bezeichnete Bewertungsgröße für TSD-Aktivitäten ist abhängig von der Heizrate und der Aktivierungsenergie [Vanderschueren1979]. Somit sind Randbedingungen wie Versuchsparameter und Materialzustände bei der Diskussion der entsprechenden Verläufe von ϑ_{\max} zu berücksichtigen. Da im Rahmen der durchgeführten Versuche die Heizrate nicht variiert wurde, kann eine Beschränkung auf alterungsbedingte Veränderungen der Isolierstoffstruktur als mögliches Ursachenspektrum vorgenommen werden. Die „peak“-Temperatur beider Kollektive zeigt zunächst einen leichten Anstieg mit zunehmender Alterungstemperatur. Eine weitere Erhöhung der thermischen Beanspruchung äußert sich unmittelbar in einer Reduktion von ϑ_{\max} . Dabei wird beispielsweise bei dem über einen Zeitraum von 5000 h vorbeanspruchten Kollektiv eine Abnahme der „peak“-Temperatur unter das Niveau nach rein elektrischer Alterungsbeanspruchung erreicht. Eine Zunahme von ϑ_{\max} kann auf einen höheren Kristallinitätsgrad zurückgeführt werden, der sich initial aufgrund von Nachkristallisationsvorgängen durch Beanspruchungen mit erhöhten Temperaturen einstellt [Suh1992].

Ein wesentlicher Unterschied im Verlauf von ϑ_{\max} der beiden in Bild 4.14 betrachteten Alterungsparameterkombinationen kann nicht festgestellt werden. Somit verbleibt anhand der erzielten Ergebnisse die Auffassung, dass eine gleichzeitige elektrische und thermische Alterung des Isoliermaterials zu einer Abnahme der „peak“-Temperatur führt. Die dabei ursächlichen Mechanismen erscheinen thermisch dominiert zu sein. Es ergibt sich damit eine ähnliche Tendenz, wie sie in [Gubanski1993] beschrieben wird.

4.4.2 Einfluss der Alterungsdauer

Aufgrund der im vorangegangenen Unterkapitel beschriebenen Beeinflussung der Aktivierungsenergie durch die applizierte Alterungstemperatur werden nachfolgend zusätzliche Resultate vor dem Hintergrund möglicher Zeiteffekte besprochen. Bild 4.15 kann dazu entnommen werden, dass bei einer ausschließlichen Wechselfeldbeanspruchung bis zu Alterungszeiten von 8760 h keine Veränderung von W_A auftritt. Dabei ist anzumerken, dass die Alterungsfeldstärke des 100-h-Kollektivs 36,4 kV/mm betrug und die beiden anderen Probengruppen jeweils mit 13,1 kV/mm beansprucht wurden. Insofern bestätigt sich hier ein im untersuchten Zeitraum von rein elektrischen Beeinflussungen weitestgehend unabhängiges Verhalten hinsichtlich des Kennwertes W_A . Im Fall einer Alterungsbeanspruchung mit 90 °C steigt die ermittelte Aktivierungsenergie bei Ausdehnung der Alterungsdauer von 100 h auf 5000 h zunächst an. Da diese Temperatur unterhalb der Kristallschmelztemperatur liegt, ist keine ausgeprägte Veränderung der Materialmorphologie zu erwarten. Vielmehr stellen sich infolge von Nachkristallisationsvorgängen höher Werte von W_A ein. Eine weitere Ausdehnung der Beanspruchungszeit auf 8760 h äußert sich dann jedoch in geringeren Aktivierungsenergien. Diese Erscheinung kann dahingehend interpretiert werden, dass aufgrund einer ausreichend langen Einwirkung der Alterungstemperatur 90 °C die zuvor bereits festgestellte Reduktion der Dichte von Ladungsträgerspeicherplätzen eingeleitet wird. Der Vorgang kann bei hohen Temperaturen infolge eines intensiveren Abbaus interstitieller Zonen zwischen amorphen und kristallinen Bereichen in ei-

nem kleineren Zeitfenster ablaufen, wie ein Vergleich mit den im oberen Diagramm in Bild 4.13 dargestellten Ergebnissen zeigt.

Weiterhin wird hier eine Verminderung der Abnahme von W_A bei gleichzeitiger elektrischer und hoher thermischer Beanspruchung oberhalb der Kristallitschmelztemperatur gegenüber dem entsprechenden rein thermischen Fall nicht unmittelbar ersichtlich. Diese Gegebenheit ist sehr wahrscheinlich auf die bei einer Alterungstemperatur von 90 °C nur geringfügigen Modifikationen der Materialstruktur zurückzuführen, in dessen Folge durch ein weitgehend unverändertes freies Volumen innerhalb des Polymerkörpers keine erhöhten Wahrscheinlichkeiten für Ladungsträger bestehen, an „traps“ größerer energetischer Tiefe zu gelangen.

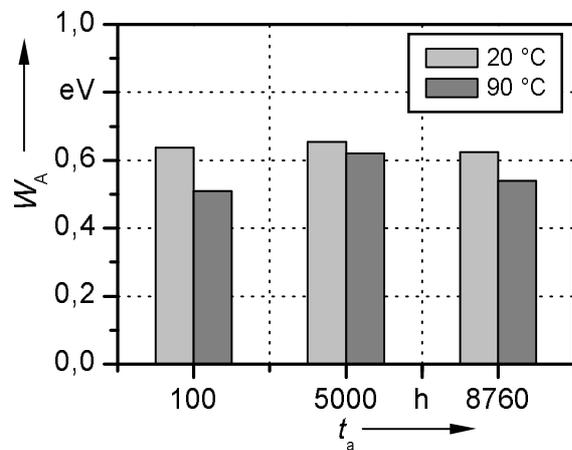


Bild 4.15: Aktivierungsenergien W_A von unterschiedlich gealterten VPE-Modellkabeln in Abhängigkeit von der Alterungsdauer t_a für Alterungstemperaturen von 20 °C und 90 °C ($E_a = 36,4$ kV/mm für $t_a = 100$ h und $E_a = 13,1$ kV/mm für $t_a = 5000$ h bzw. 8760 h)

Neben der unter den zuvor diskutierten Alterungsparametern beginnenden Einleitungsphase einer Reduzierung der Dichte von Ladungsträgerspeicherplätzen ist auch bei längeren Alterungsphasen mit einer thermischen Beanspruchung unterhalb der Kristallitschmelztemperatur nicht mit einem signifikanten Verbrauch von Antioxidantien zu rechnen. Daher ist ein merklicher Verlust von Fremdmolekülen, die als „traps“ wirken, nicht zu prognostizieren. Zusätzliche Reduktionen von „traps“ sowie gegebenenfalls deren energetische Verschiebung hin zu geringeren Werten durch diffusionsbedingte physikalische Abgänge der Fremdmoleküle sind aufgrund der im Vergleich zu nur gering thermisch vorbeanspruchten Proben lediglich wenig modifizierten Materialmorphologie nicht zu erwarten.

Die Diskussion der aus thermisch stimulierten Depolarisationsstrommessungen erzielten Ergebnisse abschließend ist zu berücksichtigen, dass es infolge der verhältnismäßig großen Probendicke sowie der radialsymmetrischen Geometrie des Versuchskabels zu unterschiedlichen Aktivierungsniveaus von relevanten Depolarisationsvorgängen innerhalb des gesamten Isolierstoffvolumens kommt. Diese Umstände können allgemein zu einer Vergrößerung der Materialinhomogenität sowie zu einer verstärkten Überlagerung von Relaxationserscheinungen führen, die eine insbesondere bei hohen Beanspruchungstemperaturen erkennbare Abhängigkeit von der Kombination der Alterungsparameter Temperatur und Dauer aufweisen. Demzufolge wird die Extraktion separater Relaxationsvorgänge deutlich erschwert und vor dem Hintergrund der bereits erörterten schwellwertbasierten Mechanismen im Bereich der Alterungsphänomene von VPE oftmals erst bei Überschreitung der Beanspruchungsgrößen von prozessrelevanten Grenzwerten erkennbar.

4.5 Dielektrische Spektroskopie von VPE-isolierten Kabeln im Frequenzbereich

Das vorliegende Unterkapitel behandelt die im Rahmen von dielektrischen Spektroskopien im Frequenzbereich an verschiedenen vorbeanspruchten VPE-isolierten Modellkabeln erzielten Ergebnisse. Dazu werden zunächst Einflüsse von unterschiedlichen Alterungsfeldstärken und -temperaturen auf den Verlauf des dielektrischen Verlustfaktors in einem Frequenzbereich von 1 mHz bis 1 kHz betrachtet, wobei eine Unterteilung der Resultate hinsichtlich der Alterungstemperatur vorgenommen wurde. Daran anschließend werden spezifische Kapazitäten der Kabelproben nach unterschiedlichen thermischen Vorbeanspruchungen über eine Zeitspanne von 2000 h verglichen. Im Rahmen der Untersuchung möglicher zeitlicher Beeinflussungen der dielektrischen Kenngrößen erfolgt eine Diskussion ausgewählter $\tan \delta$ -Werte für die Messfrequenzen 0,1 Hz und 50 Hz sowie eine Betrachtung der Verläufe von spezifischen Kapazitäten mit deutlich voneinander abgrenzbaren thermischen Vorbeanspruchungen.

4.5.1 Einfluss der Alterungstemperatur und der -feldstärke

Dielektrische Verluste von festen, verlustarmen Isolierstoffen in einem elektrischen Wechselfeld mit Frequenzen unterhalb von etwa 1 kHz werden vorwiegend durch Grenzflächenpolarisationen hervorgerufen (vgl. Kapitel 3.4). Daher sind infolge von Vorbeanspruchungen, die die morphologische Struktur des Materials beeinflussen, Veränderungen im dielektrischen Verlustverhalten zu erwarten. Im Fall von teilkristallinen Polymeren treten insbesondere bei der Separation von entsprechenden Relaxationserscheinungen Schwierigkeiten auf, die aufgrund von Überlagerungen zahlreicher Effekte verursacht werden. Dazu gehören Ladungsträgerbewegungen infolge von thermisch aktivierten Diffusionsvorgängen in vollständigen Kabelproben mit unmittelbar an die VPE-Isolierung angrenzenden Leitschichten. Aber auch vorhandene radiale Temperaturgradienten innerhalb der Kabelisolierung durch Leitererwärmung rufen Heterogenitäten im Bereich von thermisch bedingten Morphologiemodifikationen hervor. Vor dem skizzierten Hintergrund werden im Folgenden die ermittelten Messergebnisse diskutiert.

Die untere Graphik in Bild 4.16 zeigt die Verläufe des dielektrischen Verlustfaktors $\tan \delta$ von VPE-isolierten Modellkabeln, die für eine Dauer von 2000 h mit Alterungstemperaturen von 110 °C bzw. 130 °C sowie mit und ohne gleichzeitiger elektrischer Wechselfeldbeanspruchung von 13,1 kV/mm gealtert wurden. Anhand der Daten ist festzustellen, dass die entsprechenden Kurven ein Maximum im Bereich von ca. 100 Hz bis 200 Hz aufweisen. Im

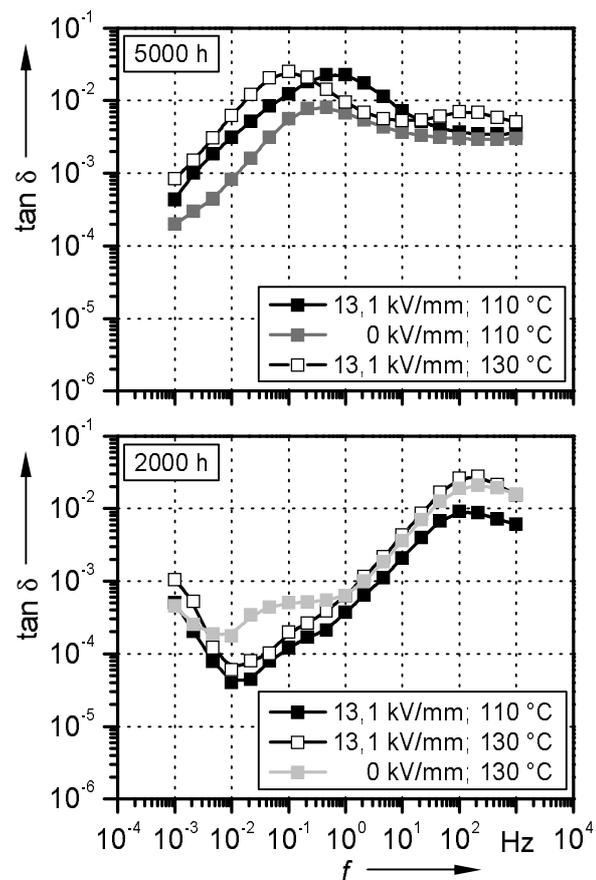


Bild 4.16: Verlustfaktor $\tan \delta$ von VPE-Kabelproben für verschiedene Alterungsparameterkombinationen mit hohen Temperaturen in Abhängigkeit von der Messfrequenz f

ausschließlich thermisch vorbeanspruchten Fall korrespondiert dieser Frequenzbereich mit einer entsprechenden Modifikation der C'' -Werte, wie anhand eines Vergleichs mit den in Bild 4.18 zusammengefassten Resultaten festgestellt werden kann. Es kann daher prinzipiell eine Detektion von Relaxationsprozessen mit der hier angewandten dielektrischen Spektroskopie an VPE-Kabelproben im Frequenzbereich erreicht werden (vgl. dazu Bild 3.21). Bei teilkristallinen Polymeren werden Relaxationsprozesse im diskutierten Frequenzbereich auch als α -Relaxationen bezeichnet, die infolge von molekularen Bewegungen innerhalb der kristallinen Bereiche entstehen [Bartnikas1997, Kremer2003]. Daher wurden beispielsweise mit zunehmendem Vernetzungsgrad geringere Amplituden von α -Relaxationen festgestellt [Kao2004]. Somit ist deren Ausbildung von der molekularen Struktur des Materials abhängig, die bei den betrachteten unterschiedlichen Vorbeanspruchungen scheinbar noch sehr ähnlich ist. Es ergibt sich daher die Annahme, dass für eindeutig detektierbare Unterschiede im dielektrischen Verlustverhalten der untersuchten VPE-isolierten Modellkabel eine ausreichend lange Einwirkung hoher Alterungstemperaturen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur notwendig ist. Neben den tendenziell ähnlichen $\tan \delta$ -Verläufen der untersuchten Kabelproben fällt auf, dass eine Erhöhung der Alterungstemperatur von 110 °C auf 130 °C zu einer Verschiebung der $\tan \delta$ -Daten hin zu höheren Werten führt. Diese im untersuchten Frequenzbereich relativ gleichmäßig auftretende Zunahme der dielektrischen Verluste ist in der nach einer Alterungszeit von 2000 h mit Temperaturen oberhalb der Kristallitschmelztemperatur bereits einsetzenden Vergrößerung der amorphen Bereiche begründet [Kremer2003]. Darüber hinaus sind zusätzlich überlagernde Anteile infolge des Verlustes an thermisch-oxidativer Stabilität denkbar. Dieser Effekt äußert sich in einem Anstieg des dielektrischen Verlustfaktors sowie einer Erhöhung des spektralen Absorptionsmaßes von C=O-Bindungen [Bartnikas1997], wie später in Kapitel 4.6.2 noch deutlich wird. Die Diskussion der im unteren Diagramm von Bild 4.16 zusammengefassten Ergebnisse abschließend ist zu erwähnen, dass durch die applizierten Alterungsparameter kein Einfluss infolge einer zusätzlich elektrischen Wechselfeldbeanspruchung festzustellen ist.

Anhand der im oberen Diagramm in Bild 4.16 illustrierten $\tan \delta$ -Verläufe ist der im Vorangegangenen bereits angedeutete Zeiteinfluss erkennbar. Durch eine Verlängerung der Alterungsdauer von 2000 h auf 5000 h bilden sich Relaxationsmaxima nun bei niedrigeren Frequenzen aus. Dabei stellen sich unterschiedliche Relaxationsfrequenzen in Abhängigkeit von den einwirkenden Alterungsparameterkombinationen ein. Dieser Vorgang ist vornehmlich auf strukturelle Materialveränderungen infolge der vorgegebenen Beanspruchungen zurückzuführen [Kremer2003], und es liegen Beeinflussungen durch eine alterungsabhängige Erzeugung zusätzlicher Ladungsträger und Migrationseffekte niedermolekularer Stoffe aus den Leitschichtmaterialien vor [Bulinski1998]. Insbesondere eine Vergrößerung amorpher Zonen, die durch verlängerte Alterungszeiten bei Temperaturen oberhalb der Kristallitschmelztemperatur intensiviert wird, erleichtert die Aufnahme von Entstehungsprodukten des Autoxidationsprozesses, der infolge der ausgedehnten Einwirkung hoher Alterungstemperaturen verstärkt ausgeprägt ist. Dieser Effekt basiert im Wesentlichen auf dem gegenüber kristallinen Domänen größeren Diffusionskoeffizienten der amorphen Phase [Bartnikas1983, Sheu1989] und aktiviert somit die vermehrte Ausbildung von Grenzflächenpolarisationen, deren Zunahme sich beispielsweise in ansteigenden $\tan \delta$ -Werten speziell im niedrigen Frequenzbereich äußert [Zaengl2003a].

Die beobachtete unterschiedliche Frequenzlage der Verlustmaxima steht im Zusammenhang mit bereits erwähnten Synergieeffekten bei gleichzeitiger thermischer und elektrischer Alterungsbeanspruchung, wobei durch ausreichenden elektrischen Stress zusätzliche temperaturbedingte

Morphologieveränderungen ermöglicht werden können. Die Wirksamkeit dieser Vorgänge wird erst deutlich, wenn die einwirkenden Beanspruchungsgrößen prozessrelevante Schwellwertbereiche überschritten haben. In diesem Fall sind ausreichend lange Alterungszeiten auf hohem Temperaturniveau dafür erforderlich. Diese Beobachtung wird insbesondere dadurch gestützt, dass nach einer Beanspruchungsdauer von 2000 h die entsprechenden Kurven in Bild 4.16 für eine Alterungstemperatur von 130 °C keine Verschiebung in der Frequenzlage des Relaxationsmaximums infolge einer zusätzlichen elektrischen Alterungsbeanspruchung im Vergleich zu ausschließlich thermischer Vorbeanspruchung zeigen.

Durch dielektrische Spektroskopien im Frequenzbereich können an VPE-isolierten Modellkabeln alterungsabhängige Materialveränderungen festgestellt werden, wenn alterungsrelevante Schwellwerte bei den Beanspruchungsgrößen überschritten wurden. Darüber hinaus sind Synergieeffekte extrahierbar, die durch eine gleichzeitige elektrische und thermische Beanspruchung verursacht werden. Speziell das unterschiedliche Verhalten im Verlauf des dielektrischen Verlustfaktors bei niedrigen Messfrequenzen eignet sich als Beschreibungsgröße im Rahmen einer Zustandsbewertung von VPE-Isolierungen. Diese Bemerkung korrespondiert mit den Aussagen in [Hvidsten1998].

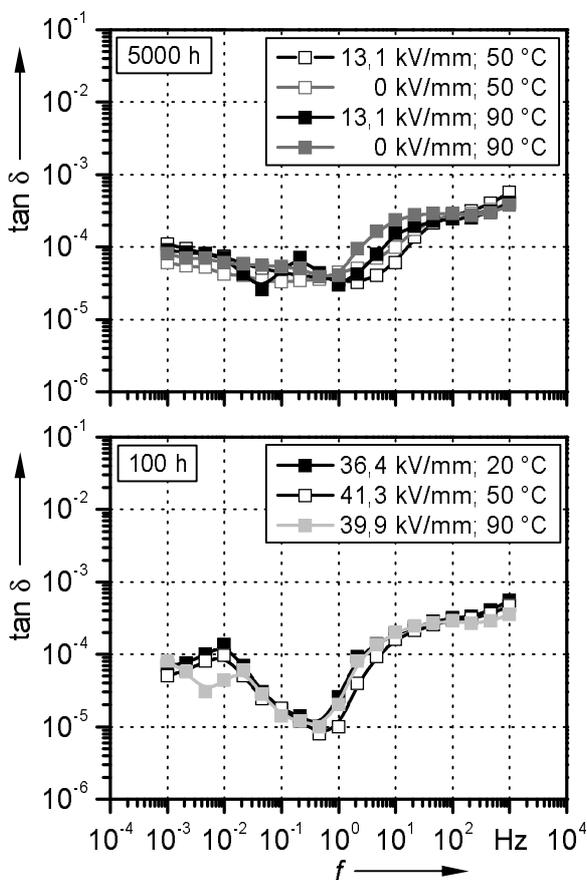


Bild 4.17: Verlustfaktor $\tan \delta$ von unterschiedlich vorbeanspruchten VPE-Kabelproben mit moderaten Temperaturen in Abhängigkeit von der Messfrequenz f

Zur Verdeutlichung der in Bild 4.16 zusammengefassten Ergebnisse werden im Folgenden die in Bild 4.17 dargestellten Resultate der $\tan \delta$ -Verläufe erörtert. Die Temperatur der Alterungskollektive wurde dabei unterhalb des kristallinen Schmelzbereiches eingestellt. Zunächst ist bei der Betrachtung der unteren Graphik in Bild 4.17 anzumerken, dass infolge einer nur sehr kurzen Beanspruchungsdauer von 100 h vergleichsweise hohe elektrische Alterungsfeldstärken keinen feststellbaren Einfluss auf den Verlauf des dielektrischen Verlustfaktors im untersuchten Frequenzbereich ausüben. Darüber hinaus wirken sich unterschiedliche Alterungstemperaturen zwischen 20 °C und 90 °C ebenfalls nicht erkennbar auf den $\tan \delta$ -Verlauf aus, womit im Wesentlichen eine sichtbare Ausbildung von Verlustmaxima gemeint ist. Diese Beobachtung korrespondiert mit den zuvor gemachten Aussagen hinsichtlich des Vorliegens von alterungsbedingten strukturellen Veränderungen der Materialstruktur, wobei insbesondere ein ausreichend lange einwirkendes hohes thermisches Niveau im Bereich der Kristallitschmelztemperatur und darüber für Veränderungen im dielektrischen Verlustverhalten notwendig ist.

Weiterhin zeigt das obere Diagramm in Bild 4.17, dass Alterungstemperaturen bis 90 °C, die über einen Zeitraum von 5000 h separat oder in Kombination mit moderater Wechselspannungsbeanspruchung einwirken, scheinbar keine mit dielektrischen Spektroskopien im Frequenzbereich feststellbaren Morphologieveränderungen verursachen, da sich keine charakteristischen Verlustmaxima ausbilden. Darüber hinaus wird aufgezeigt, dass keine für das Auftreten von Synergieeffekten erforderlichen Überschreitungen der Beanspruchungsgrößen von relevanten Schwellwertbereichen vorliegen. Insofern können die in Bild 4.17 zusammengefassten Resultate als Verifizierung der im Rahmen der Diskussion von Bild 4.16 erarbeiteten Aussagen angesehen werden. Außerdem zeigen die in Bild 4.16 und Bild 4.17 abgebildeten Ergebnisse, dass eine unerwünschte Beeinflussung der $\tan \delta$ -Verläufe durch so genannte Elektrodenpolarisationen nicht vorliegt [Kremer2003], die sich in einem überproportionalen Anstieg des dielektrischen Verlustfaktors bei niedrigen Frequenzen auf die höchsten im untersuchten Frequenzbereich festgestellten $\tan \delta$ -Werte äußern würden.

Zur weiteren Verdeutlichung von mit dielektrischen Spektroskopien im Frequenzbereich feststellbaren morphologischen Materialveränderungen dienen die in Bild 4.18 illustrierten Ergebnisse. Dabei weist die spezifische Kapazität C' von rein thermisch vorbeanspruchten VPE-isolierten Modellkabeln erst eine Veränderung auf, wenn die Alterungstemperaturen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur oder darüber liegen. Die Zunahme von C' mit niedrigeren Frequenzen wird auch als dielektrische Anisotropie oder anomale Dispersion bezeichnet [Beyer1986] und entspricht bezüglich der Frequenzlage einem Verlustmaximum (s. Bild 3.21). Als Ursache für eine Erhöhung von C' können z. B. geometrische Veränderungen infolge des speziell bei hohen Temperaturen merklichen Unterschiedes zwischen den thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Innenleiter und Isolierung angesehen werden [Densley1994]. Zusätzlich erleichtern durch hohe Alterungstemperaturen initiierte morphologische Modifikationen die Freigabe von herstellungsbedingt absorbiertem Sauerstoff und verstärken somit autoxidative Vorgänge [Shimizu2000]. Infolgedessen sind Veränderungen im Polarisationsverhalten der VPE-Kabelprobe zu erwarten, die zu frequenzabhängigen Beeinflussungen des Kapazitätsverlaufs führen und sich auf das anomale Dispersionsverhalten der Permittivität zurückführen lassen.

4.5.2 Einfluss der Alterungsdauer

Im vorangegangenen Abschnitt wurde bereits die Notwendigkeit ausreichend langer Einwirkzeiten von entsprechend hohen Alterungstemperaturen zur Einleitung von Veränderungen im frequenzabhängigen dielektrischen Verlustverhalten an VPE-Modellkabeln aufgezeigt. Daher soll dieser spezielle Aspekt im folgenden Unterkapitel mit Hilfe weiterer Ergebnisse näher beleuchtet werden. Dazu sind in Bild 4.19 die spezifischen Kapazitäten von thermisch gealterten VPE-Kabelproben in Abhängigkeit von der Messfrequenz aufgetragen. Dabei erfolgte mit Alterungs-

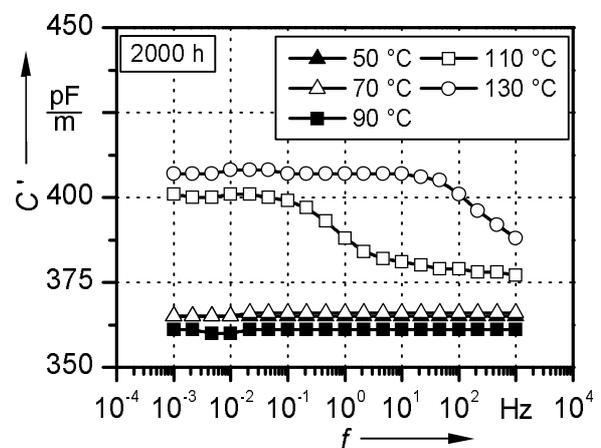


Bild 4.18: Spezifische Kapazität C' von VPE-Modellkabeln für verschiedene Alterungstemperaturen in Abhängigkeit von der Messfrequenz f ($E_a = 0$ kV/mm)

temperaturen von 50 °C und 110 °C eine Unterteilung in zwei deutlich voneinander abgrenzbare Gruppen. Eine zeitliche Abhängigkeit möglicher Veränderungen der spezifischen Kapazität wird am Beispiel unterschiedlich langer Alterungszeiten von 2000 h und 5000 h diskutiert. Bild 4.19 zeigt deutlich, dass bei einer Alterungstemperatur von 50 °C eine Verlängerung der Alterungsdauer von 2000 h auf 5000 h keine signifikante Änderung im C' -Verlauf hervorruft. Diese Beobachtung korrespondiert mit den zuvor gemachten Feststellungen, dass ein thermisches Vorbeanspruchungsniveau unterhalb der Kristallitschmelztemperatur im untersuchten Zeitfenster zu keinen mit dielektrischen Spektroskopien im Frequenzbereich feststellbaren Veränderungen im Verlustverhalten führt. Wird die Alterungstemperatur jedoch auf 110 °C erhöht, so ergibt sich eine andere Tendenz. Nach einer Beanspruchungsdauer von 2000 h erhöht sich die spezifische Kabelkapazität mit abnehmender Messfrequenz, wobei der anomale Dispersionsbereich in einem Frequenzfenster von etwa 0,1 Hz bis 1 Hz liegt. Als Ursache für die Zunahme der C' -Werte sind die erhöhte Differenz zwischen den thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Innenleiter und Isolierung sowie die durch strukturelle Materialveränderungen verstärkte autoxidative Stoffbeanspruchung anzusehen. Eine Verlängerung der Vorbeanspruchungsdauer von 2000 h auf 5000 h äußert sich bei einer Alterungstemperatur von 110 °C in einer Verschiebung des anomalen Dispersionsbereiches hin zu höheren Frequenzen im Bereich von ca. 1 kHz. Diese Veränderung

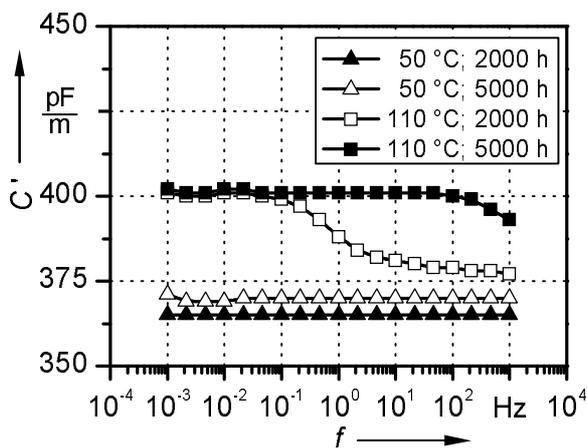


Bild 4.19: Spezifische Kapazität C' von VPE-Modellkabeln für verschiedene Alterungszeiten nach Beanspruchung mit 50 °C und 110 °C in Abhängigkeit von der Messfrequenz f ($E_a = 0$ kV/mm)

wird auf den durch die deutlich längere Einwirkung hoher Temperaturen intensivierten Abbau thermisch-oxidativer Stabilität zurückgeführt. Zusätzlich können Überlagerungseffekte durch Migrationsvorgänge niedermolekularer Stoffe aus den Leitschichtmaterialien in das Isolierstoffvolumen auftreten, die das Polarisationsverhalten der Kabelprobe beeinflussen. Dieser Effekt äußert sich vornehmlich in einer erleichterten Polarisierbarkeit zusätzlicher Moleküle aus den Leitschichten infolge deren geringer energetischer Bindungen, wodurch sich eine Verschiebung des anomalen Dispersionsbereichs hin zu höheren Frequenzen ergibt.

Die bereits diskutierte Eignung des dielektrischen Verlustfaktors bei niedrigen Frequenzen zur Zustandsbewertung teilkristalliner Iso-

lierstoffe wird im Folgenden anhand der in Bild 4.20 abgebildeten $\tan \delta$ -Ergebnisse bei Messfrequenzen von 0,1 Hz und 50 Hz für unterschiedliche Alterungszeiten weiter erörtert. Dabei ist anzumerken, dass die während des Alterungsprogramms beaufschlagten elektrischen Feldstärken für das 100-h-Kollektiv im Bereich zwischen etwa 36 kV/mm und 40 kV/mm lagen, wohingegen die Muster mit längeren Alterungszeiten mit 13,1 kV/mm vorbeansprucht wurden. Da sich jedoch synergistische Effekte durch von elektrischem Stress verstärkten strukturellen Materialveränderungen nach den bisherigen Erkenntnissen erst infolge hinreichend langer thermischer Beanspruchungen ausreichender Höhe zeigen, kann eine Beeinflussung der Verläufe des dielektrischen Verlustfaktors aufgrund der unterschiedlichen Alterungsfeldstärken sehr wahrscheinlich ausgeschlossen werden.

Anhand der unteren Darstellung in Bild 4.20 ergibt sich, dass bei ausschließlich elektrischer Alterungsbeanspruchung der dielektrische Verlustfaktor bei einer Messfrequenz von 0,1 Hz mit zunehmender Beanspruchungsdauer eine leicht ansteigende Tendenz zeigt. Die absoluten Unterschiede der $\tan \delta$ -Werte sind jedoch sehr gering, so dass für eine Trendbewertung weitere Ergebnisse heranzuziehen sind. Im Fall einer Messfrequenz von 50 Hz zeigt sich in der entsprechenden Darstellung keine Tendenz der $\tan \delta$ -Werte. Eine rein elektrische Alterungsbeanspruchung in den untersuchten Zeit- und Frequenzbereichen spiegelt sich demnach nicht oder nur unwesentlich in Beeinflussungen des dielektrischen Verlustverhaltens wieder. Aus der Vergangenheit ist jedoch bekannt, dass eine Veränderung im dielektrischen Verlustverhalten von LDPE bei 50 Hz durch hohe elektrische Feldstärken im Bereich von 100 kV/mm dahingehend eingeleitet werden kann, dass mit längerer Einwirkdauer ein Reduktion der $\tan \delta$ -Werte eintritt [Olshausen1979].

Eine Erhöhung der Alterungstemperatur von 20 °C auf 90 °C ruft entsprechend der oberen Graphik in Bild 4.20 bei einer Messfrequenz von 0,1 Hz einen deutlichen Anstieg des dielektrischen Verlustfaktors mit zunehmender Alterungsdauer hervor, wohingegen bei einer Frequenz von 50 Hz diese Auflösung im dielektrischen Verlustverhalten nicht erreicht wird und auch keine Trendfeststellung möglich ist. Als Ursachen für die Erhöhung von $\tan \delta$ bei 0,1 Hz sind die mit längerer Alterungsdauer höhere Wahrscheinlichkeit struktureller Veränderungen der Materialmorphologie infolge thermischer Beanspruchung sowie ein beginnender Verlust an thermisch-oxidativer Stabilität auszumachen. Diese Effekte können scheinbar auch bei Alterungstemperaturen unterhalb des kristallinen Schmelzbereiches auftreten, wobei allerdings ein deutlich längeres Zeitfenster als bei Vorbeanspruchungen mit 130 °C notwendig ist und die absoluten $\tan \delta$ -Werte bei einer Alterung mit 90 °C um ca. 2,5 bis 3 Zehnerpotenzen niedriger sind als bei thermischer Exposition bei 130 °C.

In diesem Zusammenhang ist eine Information eines Kabelherstellers interessant [GeneralCable2004], worin auf den nachteiligen Einfluss erhöhter Temperaturen oberhalb von der VPE-spezifischen maximalen Betriebstemperatur von 90 °C hinsichtlich des thermischen Stabilitätsverhaltens des Isoliercompounds eingegangen wird. Danach erfolgt schon bei Temperaturen von 105 °C ein überproportionaler Verbrauch von zugesetzten Antioxidantien, so dass eine zeitliche Begrenzung von Übertemperaturen im Betrieb zu beachten ist. Jedoch muss aufgrund der erhöhten Konzentration von Antioxidantien in amorphen Bereichen [Audouin1995] davon ausgegan-

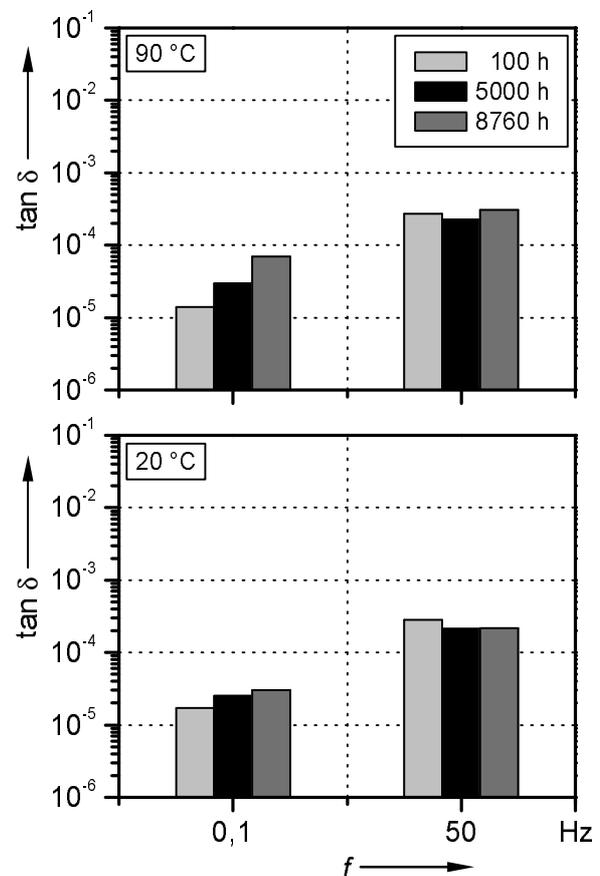


Bild 4.20: Verlustfaktor $\tan \delta$ von VPE-Kabeln bei 0,1 Hz und 50 Hz nach unterschiedlich langen Beanspruchungen mit 20 °C und 90 °C

gen werden, dass deren thermisch bedingter Verbrauch durch Wechselwirkungsvorgänge infolge von morphologischen Veränderungen der Materialstruktur überlagert wird, die beispielsweise durch eine Vergrößerung amorpher Zonen nach intensiver hoher thermischer Beanspruchung im Bereich der Kristallitschmelztemperatur oder darüber hervorgerufen werden. Somit findet sich an dieser Stelle die Tendenz wieder, dass erst nach Überschreitung alterungsrelevanter Schwellwertbereiche mit Veränderungen im Verhalten charakteristischer Kennwerte zur Zustandsbewertung von VPE-Isolierungen zu rechnen ist.

Auffällig ist darüber hinaus die mit zunehmender morphologischer Materialveränderung aufgrund von thermischer Beanspruchung erhöhte Auflösbarkeit von Verlustfaktormessungen bei 0,1 Hz im Vergleich zu den Gegebenheiten bei einer Messfrequenz von 50 Hz (s. Bild 4.20). Die Ergebnisse der Messungen bei Netzfrequenz weisen diese Auflösung nicht auf. Die erzielten Resultate finden sich im Rahmen der Feststellungen in [Bach1993] wieder, wobei die dort vorgenommenen Angaben absoluter Zahlenwerte als Indikator für eine Zustandsbewertung zumindest als diskussionswürdig zu betrachten sind. Weiterhin ist den Ausführungen in [Steingraber1992] zu diesem Themenkomplex zu entnehmen, dass sich bei Untersuchungen des dielektrischen Verlustverhaltens von VPE insbesondere der Bereich sehr niedriger Frequenzen zur Analyse des Polarisationsverhaltens eignet.

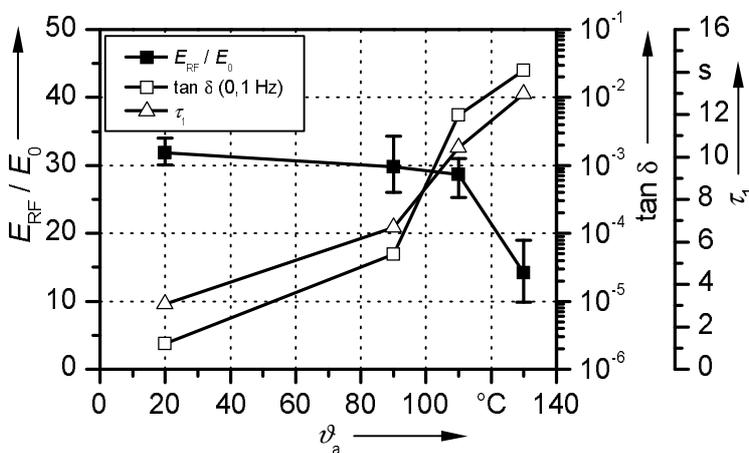


Bild 4.21: Vergleich der Ergebnisse aus Restfestigkeitsuntersuchungen und dielektrischen Spektroskopien im Zeit- und Frequenzbereich in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a ($E_a = 13,1$ kV/mm; $t_a = 5000$ h)

ber1992] zu diesem Themenkomplex zu entnehmen, dass sich bei Untersuchungen des dielektrischen Verlustverhaltens von VPE insbesondere der Bereich sehr niedriger Frequenzen zur Analyse des Polarisationsverhaltens eignet.

Mit der beobachteten Auflösbarkeit von Verlustfaktormessungen bei niedrigen Frequenzen hinsichtlich unterschiedlicher Vorbeanspruchungen steht somit eine geeignete Möglichkeit zur Zustandsbewertung polymerisolierter Energiekabel zur Verfügung, wobei deren Differenzierungspotenzial vornehmlich im Bereich von Veränderungen des thermischen

Stabilitätsverhaltens infolge von Alterungsprozessen zu sehen ist. Im Hinblick auf ansteigende thermische Belastungen von Energiekabelsystemen durch höhere Übertragungsleistungen bzw. Optimierungsvorgänge im Rahmen von Netznutzungsstrategien bei gleichzeitigen längeren Betriebszeiten der Betriebsmittel können Untersuchungsergebnisse aus dielektrischen Verlustfaktormessungen bei niedrigen Frequenzen von z. B. 0,1 Hz als nutzbare Indikatoren zur Isolierstoffdiagnose betrachtet werden.

Mit Blick auf eine Einschätzung von geeigneten Kennwerten aus dielektrischen Spektroskopien im Zeit- und Frequenzbereich hinsichtlich deren Bewertungspotenzials des Isolationszustandes der untersuchten VPE-Modellkabel erfolgt in Bild 4.21 ein Vergleich ausgewählter Resultate aus dielektrischen Messungen mit den Ergebnissen aus elektrischen Restfestigkeitsuntersuchungen an einem mit verschiedenen Temperaturen und einer elektrischen Feldstärke von 13,1 kV/mm für die Dauer von 5000 h laborgealterten Probenkollektiv. Der Darstellung kann entnommen

werden, dass die Kenngrößen $\tan \delta$ bei einer sinusförmigen Anregung mit einer Frequenz von 0,1 Hz und Relaxationszeitkonstante τ_1 mit zunehmender Alterungstemperatur einen ansteigenden Trend aufweisen, wohingegen die auf die Betriebsfeldstärke E_0 bezogene elektrische Restfestigkeit E_{RF} eine abnehmende Tendenz zeigt. Da eine Reduzierung der Restfestigkeit nach lebensdauerverbrauchenden Vorbeanspruchungen als Indikator für eine Reduktion der im Allgemeinen unbekanntes Restlebensdauer betrachtet wird, können die anhand von Bild 4.21 festgestellten konträren Tendenzen von dielektrischen Diagnosegrößen und elektrischen Restfestigkeiten in einer Bewertungsroutine des Betriebsmittels im Hinblick auf dessen Isolationszustand Einbindung finden. Der ebenfalls aus Bild 4.21 ersichtliche zum dielektrischen Verlustfaktor konforme Verlaufstrend der Relaxationszeitkonstanten τ_1 kann unter Annahme eines das Polarisationsverhalten sowie Raumladungs- und Grenzflächenphänomene beschreibenden Ersatzschaltbildes mit konzentrierten resistiven und kapazitiven Elementen auf ähnliche Größenordnungen der entsprechenden Periodendauer der Messfrequenz sowie der informationstragenden Komponente eines zugrunde liegenden RC-Ersatzschaltbildes zurückgeführt werden [Porzel1996].

4.6 Einfluss verschiedener Vorbeanspruchungen auf die physikalische Analyse von VPE

Die in den vorangegangenen Abschnitten des Kapitels zur Darstellung und Diskussion der experimentellen Versuchsergebnisse zusammengefassten Resultate sind vielfach auf beanspruchungsabhängige Veränderungen der morphologischen Struktur der VPE-Modellkabel zurückzuführen. Daher erfolgt im nachstehenden Unterkapitel eine Erörterung der aus ausgewählten physikalischen Analyseverfahren erzielten Ergebnisse mit Blick auf das zuvor analysierte charakteristische Verhalten dielektrischer und elektrischer Kennwerte, das durch unterschiedliche Vorbeanspruchungen im Rahmen der verschiedenen Untersuchungsmethoden in divergenter Art und Weise detektiert werden kann.

4.6.1 NMR-Untersuchungen

Entsprechend den Ausführungen in Kapitel 3.5.1 zur magnetischen Kernresonanz (NMR), das als vergleichsweise neues Untersuchungsverfahren im Bereich der Werkstoffcharakterisierung elastomerer und polymerer Materialien Beachtung findet, werden im Folgenden die mit unilateralen NMR-Spektroskopien gewonnenen Erkenntnisse an unterschiedlich vorbeanspruchten VPE-Kabelproben dargestellt. Dabei steht eine Analyse der Nutzbarkeit des Verfahrens zur Detektion von Veränderungen der segmentiellen molekularen Beweglichkeiten innerhalb des atomaren Verbundes in Abhängigkeit von den applizierten Alterungsbeanspruchungen im Vordergrund. Insbesondere eine genaue Untersuchung des Verhaltens von so genannten Spin-Spin-Relaxationen in Abhängigkeit der unterschiedlichen Vorbeanspruchungen befindet sich im Fokus, da in diesem Bereich bereits an elastomeren Werkstoffen materialcharakteristische Auffälligkeiten im Morphologiebereich beobachtet werden konnten, die in Korrelation mit fertigungstechnischen mechanischen Parametern stehen [Blümmler1994, Blümich2000].

Zunächst zeigt die Darstellung in Bild 4.22 die effektiven transversalen Relaxationszeiten $T_{2,\text{eff}}$ von zwei verschiedenen vorbeanspruchten Probenkollektiven. Eine Betrachtung der Ergebnisse für das mit 13,1 kV/mm für die Dauer von 5000 h gealterte Probenmuster legt eine leicht abfallende Tendenz von $T_{2,\text{eff}}$ mit zunehmenden Alterungstemperaturen bis etwa 70 °C dar, der ein mit höheren thermischen Beanspruchungen zunehmend ansteigender Trend auf höhere $T_{2,\text{eff}}$ -Werte im Vergleich zu ausschließlich elektrisch vorbeanspruchten Proben folgt. Dieses Verhalten ist mit Veränderungen in der morphologischen Struktur des Polymers und Modifikationen der Vernetzungsdichte verbunden [Reuter2004]. Die Kenngröße effektive transversale Relaxationszeit $T_{2,\text{eff}}$ ist sensitiv hinsichtlich langsamer molekularer Beweglichkeiten von Protonspins, die über dipolare Kopplungen in der Polymerkette gebunden sind [Kuhn1994, Blümich2000]. Daher ergibt sich eine Zunahme von $T_{2,\text{eff}}$ infolge einer Abnahme der Vernetzungsdichte und einer Vergrößerung des freien Volumens aufgrund höher Kettenbeweglichkeiten in amorphen Bereichen. Dieser Zusammenhang ist in der Vergangenheit durch intensive Untersuchungen an elastomeren Materialien verifiziert worden [Blümich2000, Blümich2002].

Die bis zu Alterungstemperaturen von ca. 70 °C beobachtete Verminderung von $T_{2,\text{eff}}$ stellt sich demzufolge aufgrund von Nachkristallisations- und -vernetzungs Vorgängen innerhalb der teilkristallinen Materialstruktur ein, was sich bereits in Bild 4.7 anhand der dort festgestellten anfänglichen Abnahme der Relaxationszeitkonstanten τ_1 infolge ansteigender Temperaturbeanspruchungen bis etwa 50 °C ergeben hat (vgl. Kapitel 4.3.1).

Im Vergleich mit den $T_{2,\text{eff}}$ -Werten des über einen Zeitraum von 5000 h gealterten Probenmusters ist das effektive transversale Relaxationsverhalten der für 100 h mit elektrischen Feldstärken im Bereich von ungefähr 40 kV/mm vorbeanspruchten VPE-Modellkabel durch einen ähnlichen Trendverlauf in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur gekennzeichnet, wobei das absolute Niveau der Daten gegenüber den zuvor beschriebenen Spin-Spin-Relaxationen hin zu größeren Werten verschoben ist. Dieser unterschiedliche Bereich der $T_{2,\text{eff}}$ -Werte kann auf eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Kettenfluktuationen infolge des applizierten elektrischen Feldes zurückgeführt werden. Infolgedessen ist mit einer Vergrößerung der amorphen Domänen zu rechnen, durch die letztlich eine Reduktion des Kristallinitätsgrades einleitet wird [Takahashi1985].

Die Eignung von NMR-Verfahren zur Detektion von morphologischen Veränderungen innerhalb der Struktur von PE-Materialien aufgrund von „electrical treeing“-Vorgängen wurde in der Vergangenheit von [Weigand1997] aufgezeigt. Dabei ist jedoch zu beachten, dass die dort beschriebene NMR-Technik von der in dieser Arbeit angewandten mobilen Methode abweicht. Es können jedoch sowohl mit den in [Weigand1997] angewandten Spin-Diffusionsmessungen aus dem

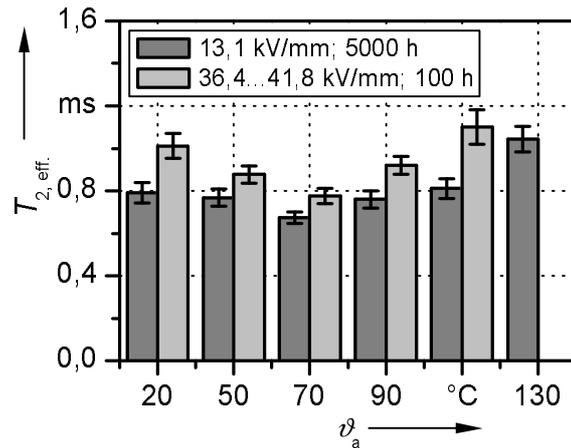


Bild 4.22: Effektive transversale Relaxationszeit $T_{2,\text{eff}}$ von unterschiedlich gealterten VPE-Kabelproben in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a

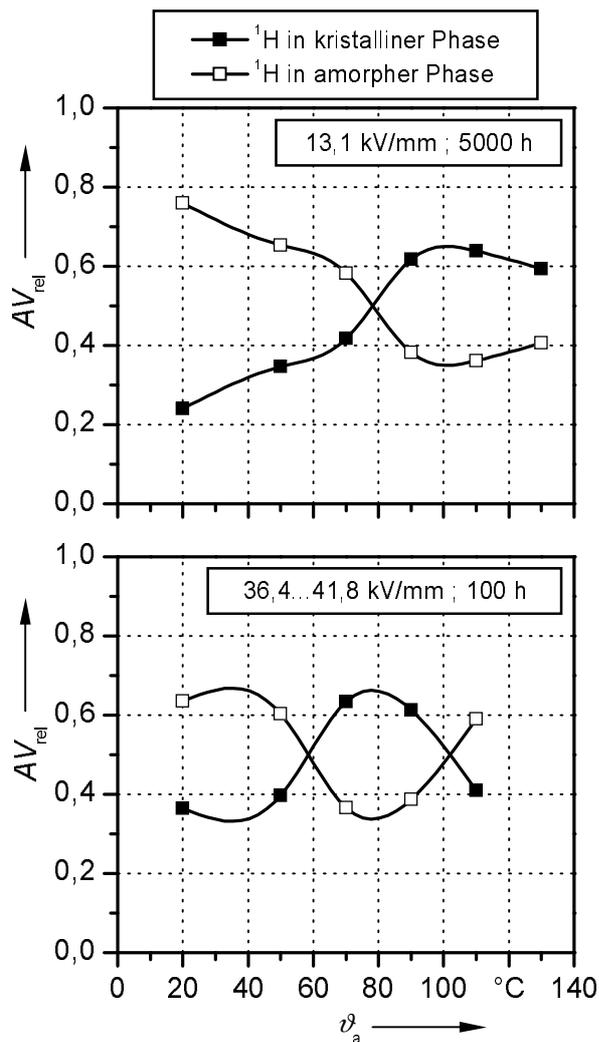


Bild 4.23: Relative Amplitudenverhältnisse AV_{rel} von Protonen in kristalliner und amorpher Phase von verschiedenen gealterten VPE-Kabelproben in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a

untersuchungen zur Evaluierung beanspruchungsabhängiger Veränderungen der Materialmorphologie erkennbar. Darüber hinaus zeigt sich an dieser Stelle, dass die Auflösefähigkeit von Spektroskopien auf dielektrischer Ebene, separat betrachtet, geringer ist als die von den vorgestellten Spektroskopien im NMR-Bereich. Folglich kann ein aus beiden Untersuchungsverfahren kombinierter Ansatz zur Zustandsbewertung von VPE-Isolierungen für Energiekabelanwendungen im Hochspannungsbereich leistungsfähig sein. Dabei wäre als nächste Stufe einer möglichen praktischen Anwendbarkeit die explizite Untersuchung der Feldeignung der Verfahren vorzunehmen.

Neben der Auswertung von unilateralen NMR-Spektroskopien hinsichtlich des transversalen Relaxationsverhaltens wurden auch mögliche Verknüpfungen von Materialparametern mit ^1H -NMR-Größen näher untersucht, wobei die in [Kuhn1994] formulierte Modellvorstellung zugrunde gelegt wurde (s. Kapitel 3.5.1.2). Danach sind die dort angegebenen formalen Beziehungen für die relativen Amplitudenverhältnisse AV_{rel} von Protonen in kristallinen und amorphen

Bereich der NMR-Bildgebung als auch mit im Rahmen dieser Arbeit genutzten Aufnahmen der transversalen Relaxation Materialcharakteristika registriert werden, da im Wesentlichen lineare Spin-Wechselwirkungen wirksam sind [Blümich2000]. Beiden Verfahren gleich ist die Zerstörungsfreiheit. In [Weigand1997] wird unter Anwendung eines an die teilkristalline Struktur des untersuchten Materials adaptierten dipolaren Filters ein Zusammenhang zwischen den kristallinen und amorphen Domänengrößen im Nanometerbereich und der TE-Aktivität an LDPE-Probekörpern mit einer Nadel-Platte-Elektrodenanordnung hergestellt. Es zeigte sich dabei, dass mit zunehmender Beanspruchungsdauer eine verstärkte „electrical-tree“-Bildung einsetzte und die Auswertung von räumlich aufgelösten Spin-Diffusionsmessungen eine damit korrespondierende Verkleinerung von festen kristallinen Zonen sowie eine entsprechende Zunahme der mobilen amorphen Domänen ergab. Darüber hinaus konnten mit dieser Technik deutliche Unterschiede zwischen der deteriorierten „electrical-tree“-Region und dem unbeeinflussten umgebenden Bereich festgestellt werden.

Anhand der in Bild 4.22 illustrierten Resultate von zwei hinsichtlich der Kombination Alterungsfeldstärke und -dauer unterschiedlich vorbeanspruchten Probenkollektive ist die Sensitivität unilateraler NMR-Spektroskopien an Isolierstoffen aus VPE mit Blick auf Unter-

Domänen als Indikator für Polymerketten zwischen Vernetzungsknoten und Ketten mit freien Enden zu betrachten. Es werden dabei die relativen Masseanteile von Protonen in den hinsichtlich der molekularen Beweglichkeit unterschiedlichen Zonen erfasst. Die Abhebung auf die Gegebenheiten bei Protonen ist auf die Bedeutung von deren Resonanzen für die Strukturauflösung organischer Substanzen zurückzuführen [Friebolin 1999].

Die obere Graphik in Bild 4.23 veranschaulicht dazu die entsprechenden relativen Amplitudenverhältnisse AV_{rel} des mit 13,1 kV/mm für die Dauer von 5000 h gealterten Probenmusters in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a . Ein Anstieg von $AV_{\text{rel, kristallin}}$ korrespondiert dabei mit einem Abfall von $AV_{\text{rel, amorph}}$. Es kann anhand der Verläufe festgestellt werden, dass mit zunehmender thermischer Beanspruchung zunächst eine Art Nachkristallisation eintritt, die bereits bei der Diskussion der Ergebnisse in den Kapiteln 4.2.2 und 4.3.1 beobachtet werden konnte. Ab einer thermischen Vorbeanspruchung im Bereich von etwa 100 °C ändert sich dann der dargestellte Kurventrend, und es kann eine mit weiter zunehmendem thermischem Stress einsetzende Vergrößerung der amorphen Zonen konstatiert werden. Die hier evaluierten Kenngrößen sind durch die Heterogenität des teilkristallinen Polymeren gekennzeichnet, so dass eine vergleichsweise enge Abgrenzung von Bereichen mit Änderungen hinsichtlich der Materialcharakteristika nur wenig ausgeprägt auftritt.

Zur Bewertung von thermisch bedingten morphologischen Modifikationen der Materialstruktur aufgrund von hohen elektrischen Feldstärken dient die untere Darstellung in Bild 4.23. Dabei ist zuerst ein ähnlicher Verlauf wie in der oberen Abbildung zu erkennen, dessen Trendänderung jedoch im Vergleich dazu bereits bei niedrigeren Temperaturen von etwa 70 °C bis 80 °C eintritt. Eine verstärkte Ausdehnung amorpher Bereiche ist dann durch den deutlich ansteigenden Verlauf von $AV_{\text{rel, amorph}}$ ab ca. 100 °C auszumachen.

Eine Eignung von ^1H -NMR-Verfahren zur Untersuchung des Einflusses von thermischen Beanspruchungen auf die Kristallinität von VPE-Compounds wurde in [Hoon-Lee 1996] geprüft, wobei eine Analyse von verschiedenen Breitlinienspektren vorgenommen wurde. Da diese Technik aufgrund der teilkristallinen Struktur von VPE sowie der damit verbundenen komplexen Wechselwirkungen im thermischen Alterungsverhalten in ihrer Anwendung durch Überlagerungseffekte schwierig zu handhaben ist, sind differenzierte Auswerteverfahren zur Ableitung von Trenaussagen erforderlich. In [Hoon-Lee 1996] werden Vergrößerungen der amorphen Zonen und zufällige Kettenspaltungen aufgrund von thermischen Vorbeanspruchungen beobachtet, deren Ausmaße mit zunehmender Beanspruchungsdauer ansteigen.

4.6.2 FTIR-Spektroskopien

Neben den im vorangegangenen Unterkapitel erörterten Ergebnissen aus NMR-Untersuchungen mit zerstörungsfreier unilateraler Aufsetztechnik dienen die in diesem Abschnitt zusammengefassten Resultate aus FTIR-Spektroskopien an Dünnschnitten von VPE-Proben zur Auswertung physikalischer Strukturänderungen infolge der eingestellten Vorbeanspruchungen. Dabei hat sich diese Untersuchungsmethode in der Vergangenheit im Bereich von Kunststoffen durch die Analyse neuer Banden, Bandenverschiebungen oder der Auflösung von bestehenden Schwingungsbanden funktioneller Gruppen aufgrund von beaufschlagten Beanspruchungen bewährt. Jedoch erfordert die Heterogenität der teilkristallinen Materialstruktur von VPE spezielle Auswerteverfahren, die in Kapitel 3.5.2.2 näher beschrieben sind.

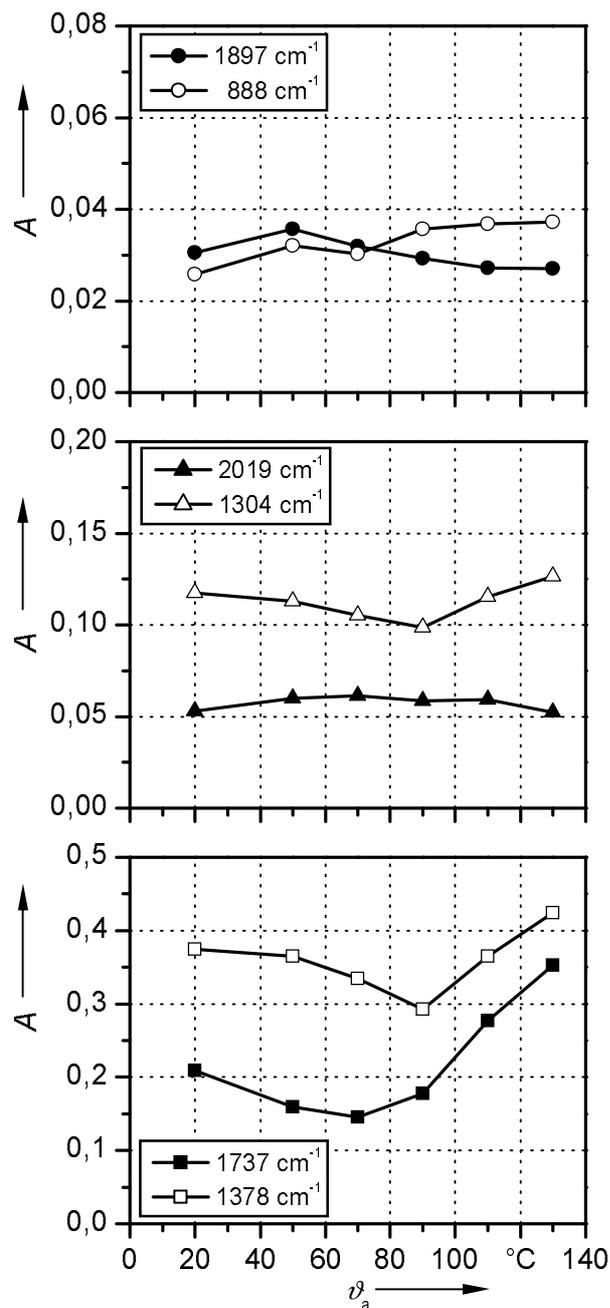


Bild 4.24: Spektrales Absorptionsmaß A von elektrisch und thermisch gealterten VPE-Proben in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a für materialspezifische Banden im Bereich **Pos. 1** ($E_a = 13,1$ kV/mm; $t_a = 5000$ h)

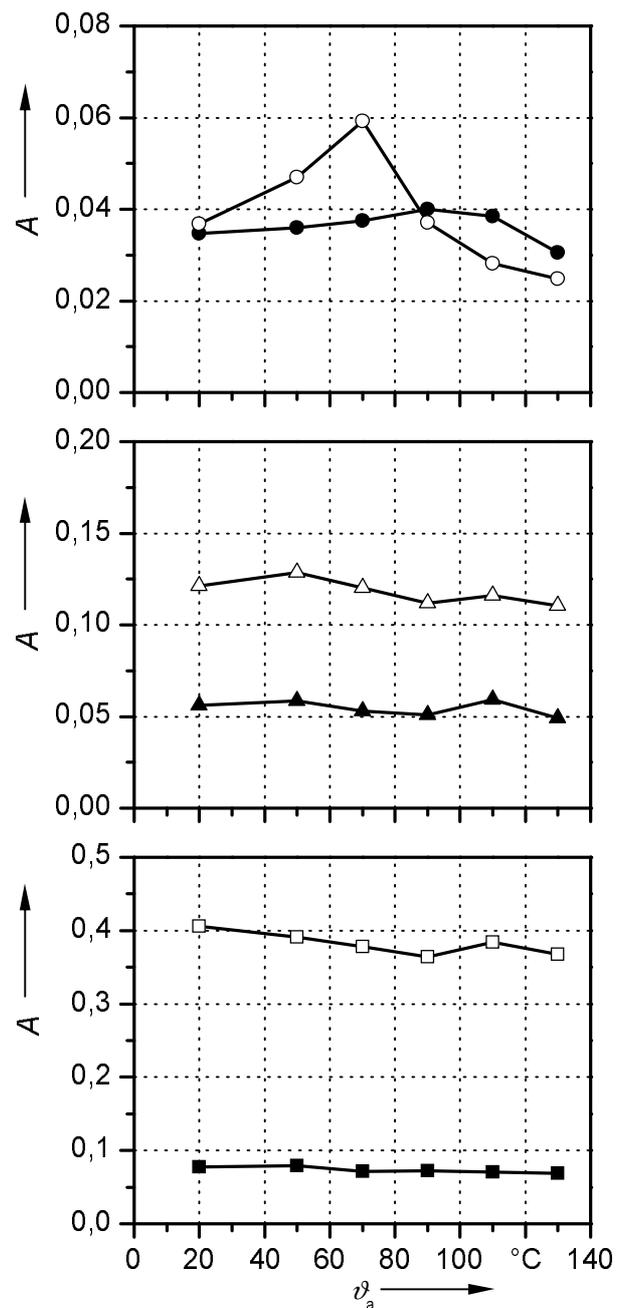


Bild 4.25: Spektrales Absorptionsmaß A von elektrisch und thermisch gealterten VPE-Proben in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a für materialspezifische Banden im Bereich **Pos. 2** ($E_a = 13,1$ kV/mm; $t_a = 5000$ h)

In Bild 4.24 ist der Einfluss unterschiedlicher Alterungstemperaturen im Bereich der Grenzfläche zwischen Isolierung und innerer Leitschicht (Pos. 1) auf die Extinktion IR-aktiver Banden von Dünnschnitten aus elektrisch und thermisch vorbeanspruchten VPE-Proben aufgetragen. Eine Übersicht zur Bedeutung der einzelnen betrachteten Banden ist in Kapitel 3.5.2 angegeben. Dem unteren Diagramm in Bild 4.24 kann entnommen werden, dass die Bande bei

1378 cm^{-1} mit zunehmender Alterungstemperatur zunächst leicht abnehmende Extinktionen und bei Temperaturen oberhalb von etwa 90 °C zunehmend höhere Extinktionen zeigt. Diese Bande charakterisiert den Methylgruppengehalt und erlaubt somit eine Bewertung der Materialdichte, die durch den Verzweigungsgrad des Polymers beschrieben wird. Folglich nimmt die Materialdichte mit ansteigenden Alterungstemperaturen bis ca. 90 °C zu und bei Vorbeanspruchungen mit höheren Temperaturen dann kontinuierlich ab. Diese Materialverdichtung infolge ansteigender Temperaturen des Innenleiters konnte im Vorangegangenen bereits mehrfach aufgrund von Nachkristallisationsvorgängen beobachtet werden (s. Kapitel 4.2.2, 4.3.1, 4.4.1 und 4.6.1).

Dieses Verhalten lässt sich aus dem korrespondierenden Kurvenverlauf für den Bereich zwischen Isolierung und äußerer Leitschicht (Pos. 2) gemäß Bild 4.25 nicht ableiten, was auf den im Isolierstoffvolumen vorhandenen Temperaturgradienten infolge der induktiven Leiterheizung zurückgeführt werden kann. Dabei sind je nach Höhe des Temperaturniveaus Temperaturunterschiede über die Isolierung zwischen etwa 15 K und 55 K möglich (vgl. Bild 3.2). Allerdings zeigt ein Vergleich der entsprechenden Extinktionswerte bei 1378 cm^{-1} in Bild 4.25 bei Alterungstemperaturen von 20 °C und 130 °C auch einen moderaten Abfall von ungefähr 10% , so dass eine Erhöhung der Materialdichte über der gesamten Isolierwandstärke durch erhöhte Alterungstemperaturen auftritt, dessen Intensität jedoch im Isolierstoffvolumen in Abhängigkeit des Radius unterschiedlich ausgeprägt ist.

Weiterhin ergibt sich bei Betrachtung der unteren Graphik in Bild 4.24, dass hohe thermische Beanspruchungen von 110 °C und mehr während des entsprechenden Alterungsprogramms im Vergleich mit thermisch nicht vorbeanspruchten Proben zu einem deutlichen Anstieg im Gehalt an Carbonylgruppen führen. Sie besitzen aufgrund der unterschiedlichen Elektronegativitäten von Kohlenstoff und Sauerstoff eine erhöhte Reaktivität und tragen somit bevorzugt zur Materialdegradation bei [Günzler2002]. Daher spiegelt sich hier der Verlust thermischer Stabilität wider, der sich bereits bei der Diskussion der Ergebnisse aus dielektrischen Spektroskopien im Frequenzbereich ergeben hat (s. Kapitel 4.5.1). Im Vergleich dazu zeigt die entsprechende Darstellung in Bild 4.25 über dem gesamten Bereich der eingestellten Alterungstemperaturen keine offensichtliche Änderung hinsichtlich des Gehaltes an Carbonylgruppen. Selbst bei einer Temperatur des Innenleiters von 130 °C stellt sich aufgrund des Temperaturgradienten innerhalb des Isolierstoffvolumens im Bereich von Pos. 2 eine Temperatur von nur ca. 75 °C ein, die gemäß der aus der entsprechenden Abbildung in Bild 4.24 zu entnehmenden Tendenz nicht ausreichend ist, um einen Abbau thermischer Stabilität einzuleiten.

Die mittlere Abbildung in Bild 4.24 gibt den Verlauf der für amorphe Bereiche in PE charakteristischen Bande in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur wieder. Dabei kann zunächst eine Abnahme der IR-aktiven Bande mit zunehmender thermischer Vorbeanspruchung beobachtet werden, der sich ab einem Temperaturniveau von ca. 90 °C ein Anstieg anschließt. Die entsprechende Zunahme nach einer Vorbeanspruchung mit 130 °C gegenüber einer rein elektrischen Alterung beträgt ungefähr 8% . Somit zeigt sich anhand dieser Resultate auch die Veränderung der morphologischen Struktur des untersuchten VPE-Materials im Bereich des an die innere Leitschicht angrenzenden Isolierstoffvolumens. In Ergänzung der Verhältnisse in den amorphen Zonen im Bereich von Pos. 1 veranschaulicht die korrespondierende Darstellung in Bild 4.25 eine Verschiebung der in Bild 4.24 beobachteten Tendenz aufgrund des vorhandenen Temperaturgradienten hin zu höheren Temperaturen.

Gemäß den aus den mittleren Diagrammen in Bild 4.24 und Bild 4.25 abgeleiteten Gegebenheiten im Bereich von strukturellen Materialveränderungen der amorphen Domänen dienen die in den oberen Graphiken in Bild 4.24 sowie Bild 4.25 zusammengefassten Ergebnisse hinsichtlich des Einflusses verschiedener Alterungstemperaturen auf die für die kristalline Bande von PE charakteristische IR-Aktivität bei 1897 cm^{-1} zur Ergänzung. Im Bereich von Pos. 1 nimmt die entsprechende Extinktion infolge einer Erhöhung der thermischen Vorbeanspruchung auf 50 °C leicht zu. Durch eine weitere Steigerung des thermischen Stresses während des Alterungsprogramms bis zu 130 °C stellt sich gegenüber der rein elektrischen Beanspruchung eine Abnahme der Extinktionswerte um ca. 11 % ein. Darüber hinaus wird durch Erhöhung der Alterungstemperaturen auf bis zu 130 °C im Bereich des an die innere Leitschicht angrenzenden Isolierstoffvolumens ein Anstieg der Extinktionswerte von für Vinylidengruppen charakteristischen Banden bei 888 cm^{-1} verursacht. Unter Beachtung der in Kapitel 3.5.2.2 zusammengefassten Ausführungen aus [Lázár2004] steht ein höherer Gehalt an Vinylidenbindungen im Zusammenhang mit einer Abnahme der Vernetzungsdichte eines Polymeren. Der dem oberen Diagramm in Bild 4.24 zu entnehmende Trend führt damit zu der Erkenntnis, dass eine Erhöhung der Alterungstemperatur des mit $13,1\text{ kV/mm}$ für 5000 h vorbeanspruchten Probenkollektivs eine kontinuierliche Verminderung der Nachvernetzungsaktivität des Dielektrikums im unmittelbar an die innere Leitschicht angrenzenden Isolierstoffvolumenbereich bewirkt.

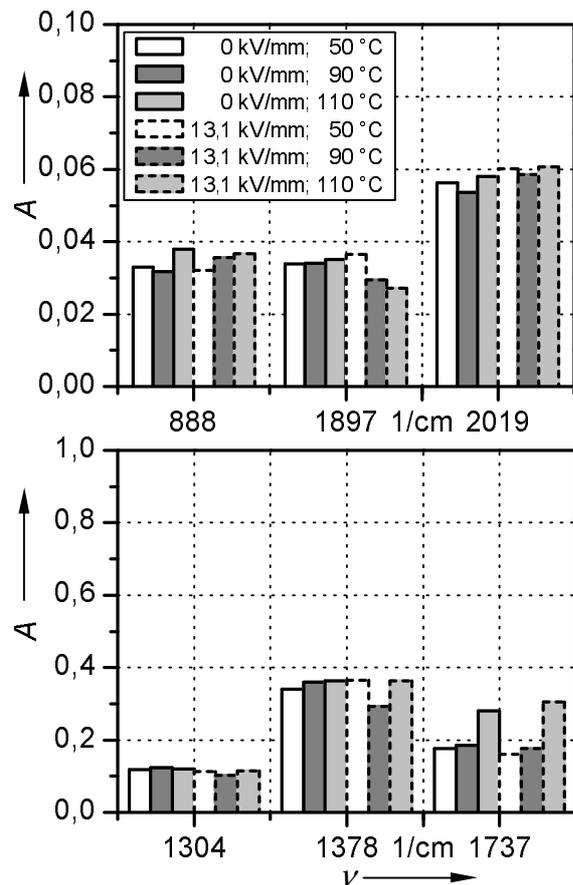


Bild 4.26: Spektrales Absorptionsmaß A von unterschiedlich elektrisch und thermisch gealterten VPE-Proben für materialspezifische Banden ν im Bereich **Pos. 1** ($t_a = 5000\text{ h}$)

An dieser Stelle ergibt sich bei zusätzlicher Berücksichtigung der in Bild 4.22 dargestellten Resultate aus NMR-Untersuchungen eine voneinander abweichende Tendenz hinsichtlich der Abhängigkeit des Nachvernetzungsprozesses von der eingestellten Alterungstemperatur. Dieser Unterschied ist jedoch auf etwas voneinander abweichende mit den jeweiligen Messverfahren untersuchte Isolierstoffbereiche hinsichtlich der radialen Position zurückzuführen. Als Bestätigung dieser Tatsache können die in der oberen Graphik in Bild 4.25 abgebildeten Ergebnisse insofern herangezogen werden, als dass im Randbereich der VPE-Isolierung hin zur äußeren Leitschicht durch das geringere Temperaturniveau infolge des vorliegenden Temperaturgradienten eine längere Einwirkdauer der thermischen Beanspruchung erforderlich ist, um Nachvernetzungseffekte einzuleiten. Daher ist in diesem Isolierstoffvolumenbereich zunächst eine tendenzielle Abnahme der Nachvernetzungsaktivität durch einen zunehmenden Gehalt an Vinylidengruppen bis zu Alterungstemperaturen von ungefähr 70 °C abzuleiten, der dann mit höheren thermischen Vorbeanspruchungen eine Zunahme der Nachvernetzungsaktivität folgt.

Dieser Unterschied ist jedoch auf etwas voneinander abweichende mit den jeweiligen Messverfahren untersuchte Isolierstoffbereiche hinsichtlich der radialen Position zurückzuführen. Als Bestätigung dieser Tatsache können die in der oberen Graphik in Bild 4.25 abgebildeten Ergebnisse insofern herangezogen werden, als dass im Randbereich der VPE-Isolierung hin zur äußeren Leitschicht durch das geringere Temperaturniveau infolge des vorliegenden Temperaturgradienten eine längere Einwirkdauer der thermischen Beanspruchung erforderlich ist, um Nachvernetzungseffekte einzuleiten. Daher ist in diesem Isolierstoffvolumenbereich zunächst eine tendenzielle Abnahme der Nachvernetzungsaktivität durch einen zunehmenden Gehalt an Vinylidengruppen bis zu Alterungstemperaturen von ungefähr 70 °C abzuleiten, der dann mit höheren thermischen Vorbeanspruchungen eine Zunahme der Nachvernetzungsaktivität folgt.

Dieses Trendverhalten steht in Übereinstimmung mit den entsprechenden Verläufen der effektiven transversalen Relaxationszeit aus Bild 4.22. Letztlich festzuhalten bleibt der Eindruck, dass es aufgrund der thermischen Beanspruchung des VPE-Compounds während des Alterungsprogramms zu Veränderungen im Bereich der Vernetzungsdichte kommt, die sich in Form von bereichsweisen Nachvernetzungen unterschiedlicher Aktivität ausbilden können.

Mit Blick auf eine Analyse synergistischer Effekte durch gleichzeitig applizierte elektrische und thermische Alterungsbeanspruchungen sind in Bild 4.26 ausgewählte Ergebnisse aus FTIR-Spektroskopien an Dünnschnitten von VPE-Modellkabeln veranschaulicht. Die Alterungsdauer der betrachteten Probenmuster betrug jeweils 5000 h. Es werden Proben mit Alterungstemperaturen unterhalb und im Bereich der Kristallitschmelztemperatur sowie mit und ohne zusätzliche elektrische Feldeinwirkung unterschieden.

Bild 4.26 kann im Wesentlichen entnommen werden, dass eine zusätzliche gemäßigte Wechselfeldbeanspruchung im untersuchten Zeitfenster von 5000 h bei Alterungstemperaturen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur zu einem leichten Anstieg im Gehalt an Carbonylgruppen ($\nu = 1737 \text{ cm}^{-1}$) führt. Dieser Trend ist bei thermischen Vorbeanspruchungen unterhalb der Kristallitschmelztemperatur nicht auszumachen, so dass an dieser Stelle wiederholt schwellwertbasierte Wechselwirkungen zwischen elektrischen und thermischen Alterungsbeanspruchungen als ursächliche Erscheinung wirksam sind. Weiterhin zeigen sich vergleichbare Synergieeffekte durch eine zusätzliche elektrische Vorbeanspruchung bei Betrachtung der Daten für 888 cm^{-1} und 1897 cm^{-1} , die entsprechend einen leichten Abfall im Vinylidengruppengehalt sowie in der für kristalline Zonen charakteristischen IR-aktiven Bande aufweisen. Es ist daher festzuhalten, dass bei einer ausreichenden thermisch verursachten Modifikation der Materialmorphologie durch zusätzlich wirkende elektrische Wechselfeldbeanspruchungen ein weiteres thermisches Aktivierungspotenzial hinsichtlich von Materialdegradationseffekten erzeugt wird.

Zur Abschätzung des Einflusses unterschiedlicher Alterungszeiten auf die im Rahmen von FTIR-Spektroskopien betrachteten IR-aktiven Banden sind in Bild 4.27 für Dünnschnitte von ausschließlich thermisch vorbeanspruchten VPE-Modellkabeln deren spektrale Absorptionsmaße

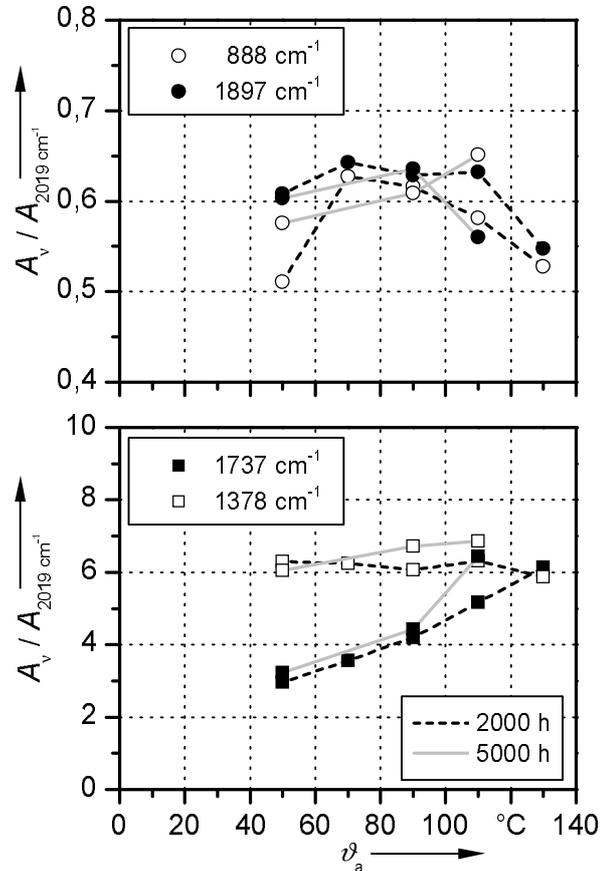


Bild 4.27: Auf das spektrale Absorptionsmaß bei 2019 cm^{-1} bezogene, ausgewählte IR-aktive Banden von vorbeanspruchten VPE-Dünnschnitten im Bereich **Pos. 1** für verschiedene Alterungszeiten in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur T_a ($E_a = 0 \text{ kV/mm}$)

dargestellt, wobei eine Normierung der Werte auf die Extinktion bei 2019 cm^{-1} vorgenommen wurde (s. Kapitel 3.5.2.2). Durch diese spezielle Auswertung wird hier exemplarisch die bei den durchgeführten FTIR-Spektroskopien erreichte Messgenauigkeit verdeutlicht, die eine Auflösung von Absorptionsunterschieden im Bereich von etwa zehn Promille ermöglicht. Anhand der im unteren Diagramm abgebildeten Daten zeigt sich der durch längere thermische Exposition der Modellkabel auf einem hohen Temperaturniveau im Bereich der Kristallitschmelztemperatur intensivierte Abbau thermischer Stabilität durch eine Verschiebung des Anstiegs im Gehalt an Carbonylgruppen hin zu niedrigeren Alterungstemperaturen. Darüber hinaus verdeutlicht die untere Graphik in Bild 4.27 die bereits zuvor konstatierte Reduktion der Materialdichte, die mit einer Zunahme des Methylgruppengehaltes korreliert. Es wird auch deutlich, dass eine Beanspruchungsdauer von 2000 h mit einer Leitertemperatur von 130 °C noch keine feststellbare Änderung hinsichtlich des Gehaltes an Methylgruppen hervorruft.

Hinsichtlich von thermisch bedingten Modifikationen der teilkristallinen Materialmorphologie weist die obere Abbildung in Bild 4.27 eine Reduktion der für kristalline Bereiche charakteristischen Bande bei 1897 cm^{-1} auf, die mit zunehmender Beanspruchungsdauer bereits bei geringeren thermischen Vorbeanspruchungen eintritt. Weiterhin wird durch die dargestellten Daten auch ersichtlich, dass eine Steigerung des Vinylidengruppengehaltes und damit ein Abbau hinsichtlich der Vernetzungsdichte eine bestimmte Exposition des Isolierstoffes auf hohem Temperaturniveau erfordert. Eine Alterungsparameterkombination von 2000 h und 130 °C führt auf der Basis der ausgewerteten Daten lediglich zu einer Zunahme gegenüber einer Beanspruchung mit 50 °C von ungefähr 3 %, wohingegen die Kombination 5000 h und 110 °C einen entsprechenden Anstieg von etwa 13 % verursacht.

Da in der vorangegangenen Diskussion der aus FTIR-Spektroskopien ermittelten Ergebnisse wiederholt Veränderungen im thermischen Stabilitätsverhalten des untersuchten VPE-Compounds mit Modifikationen des Carbonylgruppengehaltes korreliert werden konnten, zeigt Bild 4.28 dazu separat den Einfluss von Alterungstemperaturen unterhalb und im Bereich der Kristallitschmelztemperatur sowohl für eine rein thermische als auch für eine thermische und elektrische Vorbeanspruchung im Untersuchungsbereich Pos. 1.

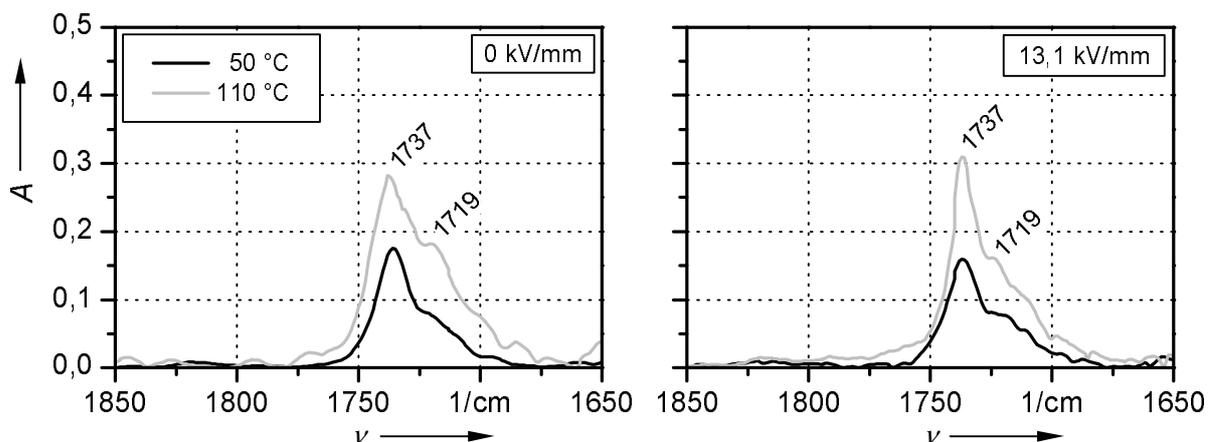


Bild 4.28: Spektrales Absorptionsmaß A von unterschiedlich elektrisch und thermisch gealterten VPE-Kabelproben für spezifische Banden von Carbonylgruppen ($t_a = 5000\text{ h}$) im Bereich Pos. 1

Es werden nur die Gegebenheiten bei einer 5000 h dauernden Alterung betrachtet, da für diese Beanspruchungszeit Ergebnisse aus Alterungsprogrammen zur Untersuchung von synergistischen Wechselwirkungseffekten zwischen Temperatur und elektrischem Wechselfeld vorliegen. Im Fall einer gleichzeitigen elektrischen Vorbeanspruchung mit 13,1 kV/mm wird durch einen Vergleich der beiden Darstellungen deutlich, dass dadurch bei einer Alterungstemperatur von 50 °C keine synergistischen Effekte im Hinblick auf weitere thermisch aktivierte Modifikationen der Materialmorphologie erkennbar sind. Bei thermischen Vorbeanspruchungen im Bereich der Kristallschmelztemperatur kann jedoch durch die zusätzliche elektrische Alterung eine Zunahme im Gehalt an Carbonylgruppen festgestellt werden. Darüber hinaus ist bei beiden Parameterkombinationen auf hohem Temperaturniveau in der abfallenden Flanke des „peaks“ bei 1737 cm^{-1} eine Änderung im Verlauf des Intensitätsabfalls in Form einer so genannten Schulter bei etwa 1719 cm^{-1} erkennbar. Diese Erscheinung ist im Zusammenhang mit Absorptionseffekten der für Ketonegruppen charakteristischen Schwingung zu betrachten. Deren tendenziell vorhandenes Auftreten kann als Indiz für einen bestehenden oxidativen Polymerabbau angesehen werden, da die Intensität der Ketonegruppen bei noch nicht vollständig konsumierten Antioxidantien in der Regel durch deren IR-aktive Esterbanden überlagert wird [Bulinski1998].

FTIR-Spektroskopien an Dünnschnitten von VPE-isolierten Energiekabeln wurden in der Vergangenheit auch durchgeführt, um das Verbleiben von Vernetzerspaltprodukten im Isolierstoffvolumen von VPE-Compounds zu analysieren [Steingraber1992, Schiller1996]. Im Rahmen der in dieser Arbeit vorgenommenen physikalischen Analysen im IR-Bereich sind daher ergänzend die bei einer Wellenzahl von 1690 cm^{-1} ermittelten Absorptionsmaße für rein thermisch sowie thermisch und elektrisch vorbeanspruchte VPE-Proben in Bild 4.29 zusammengefasst.

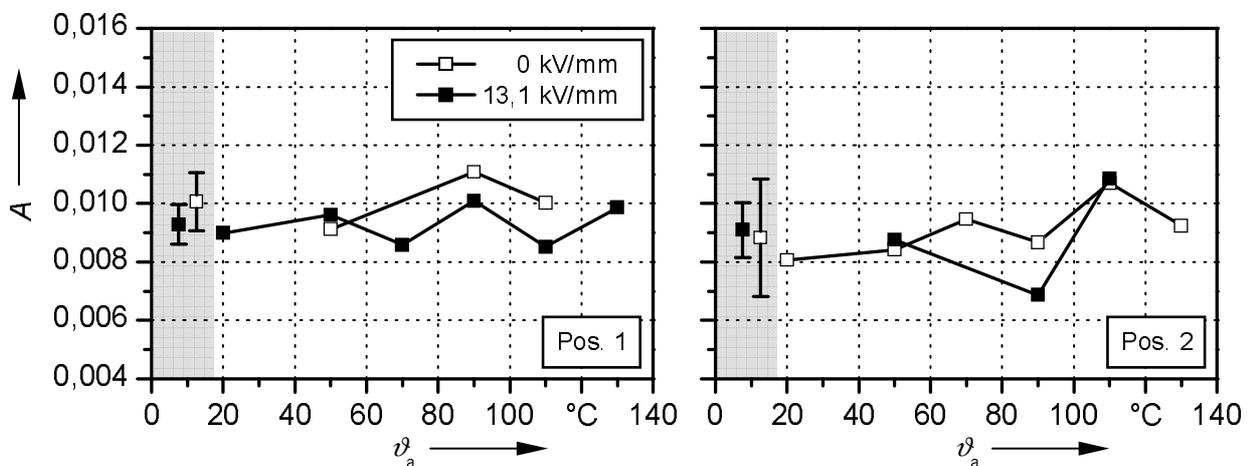


Bild 4.29: Spektrales Absorptionsmaß A der Acetophenon spezifischen Bande (1690 cm^{-1}) für unterschiedlich gealterte VPE-Kabelproben ($t_a = 5000\text{ h}$)

Die der Wellenzahl 1690 cm^{-1} entsprechenden Acetophenon spezifischen Absorptionsmaße [Ebert1992] verlaufen für das elektrisch und thermisch gealterte Probenmuster im Bereich von Pos. 1 zwischen ca. 0,8 % und 1 % und zeigen dabei keine feststellbare Abhängigkeit von der eingestellten Alterungstemperatur. Der zusätzlich in der grau unterlegten Zone des Diagramms dargestellte Mittelwert einschließlich der Stichprobenstandardabweichungen von den zuvor bestimmten Einzelabsorptionsmaßen ist kleiner als 1 %. Weiterhin ist für das ausschließlich thermisch gealterte Probenkollektiv ein vergleichbares Verhalten ersichtlich, wobei der Variationsbereich der einzelnen Daten zwischen 0,9 % und 1,1 % schwankt und der dazu gehörige Mittelwert bei etwa 1 % liegt. Eine Betrachtung der Verhältnisse im Bereich von Pos. 2 in der

rechten Abbildung von Bild 4.29 zeigt von den im Bereich von Pos. 1 zuvor beschriebenen Resultaten keine wesentlichen Abweichungen. Lediglich eine leichte Vergrößerung der Streubereiche ist ersichtlich.

Die Ergebnisse hinsichtlich des Acetophenongehaltes im Isolierstoffvolumen nach unterschiedlichen Vorbeanspruchungen lassen sich dahingehend zusammenfassen, dass nach der Konditionierungsphase der Kabelproben (vgl. Kapitel 3.2.1) ein Acetophenongehalt im Dielektrikum verbleibt, der bei anschließenden Alterungsbeanspruchungen mit Temperaturen von bis zu 130 °C über eine Dauer von 5000 h keine Abhängigkeit von der applizierten Temperatur aufweist und insgesamt ein vergleichsweise konstantes niedriges Niveau aufweist. Somit sind Einflüsse von Bestandteilen der Vernetzerspaltprodukte wie z. B. Acetophenon auf die in diesem Kapitel diskutierten Messgrößen mit sehr großer Wahrscheinlichkeit auszuschließen.

4.6.3 Dichtemessungen

In diesem Abschnitt wird der Einfluss unterschiedlicher Vorbeanspruchungen im Rahmen eines Laboralterungsprogramms auf Veränderungen der Materialdichte von VPE-isolierten Modellkabeln diskutiert. Dazu werden zunächst mit der in Kapitel 3.5.3.1 beschriebenen Pyknometermethode ermittelte Dichtewerte verglichen, wobei zwei verschiedene, im Vorangegangenen bereits öfter gegenübergestellte Probenkollektive betrachtet werden. Danach wird auf die

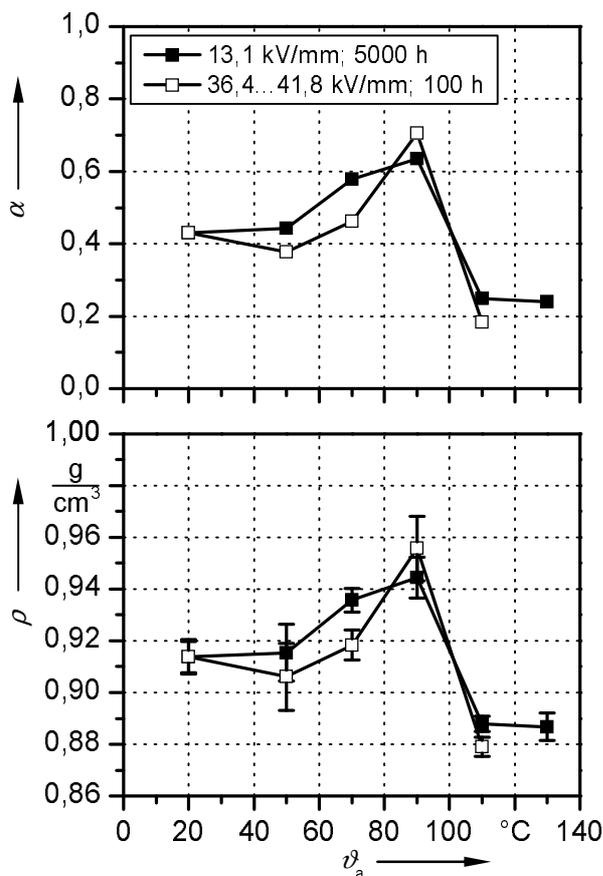


Bild 4.30: Kristallinitätsgrad α und Materialdichte ρ unterschiedlich gealterter VPE-Kabelproben in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur v_a

entsprechend den Ausführungen in Kapitel 3.5.2.2. bestimmten Kristallinitätsgrade eingegangen. Den Abschluss des Unterkapitels bildet eine Betrachtung hinsichtlich der Beeinflussung der Wärmeleitfähigkeit des Polymeren durch verschiedene Materialdichten, was besonders vor dem Hintergrund veränderter Wärmeabfuhrbedingungen durch beanspruchungsabhängige Modifikationen der Materialmorphologie von Interesse ist.

Anhand der in der unteren Darstellung von Bild 4.30 veranschaulichten Dichtewerte kann für das über eine Dauer von 5000 h vorbeanspruchte Kollektiv festgestellt werden, dass zunehmende Alterungstemperaturen zunächst eine Materialverdichtung hervorrufen, die im Zusammenhang mit Nachkristallisationseffekten zu betrachten sind [Densley1994]. Übersteigt die thermische Vorbeanspruchung jedoch einen Bereich von etwa 90 °C, so nimmt die Materialdichte aufgrund von Veränderungen der Materialmorphologie auf einen im Vergleich mit thermisch nicht gealterten Proben geringeren Wert ab. Die nur für eine Zeitspanne von 100 h mit deutlich höheren Alterungsfeldstärken beanspruchten Kabelproben weisen bezüglich der Materialdichte einen

ähnlichen Trend mit ansteigenden Alterungstemperaturen auf. Infolge der vergleichsweise kurzen Beanspruchungszeit erscheint die Wahrscheinlichkeit hinsichtlich rein thermisch verursachter Modifikationen der Materialstruktur gering. Durch die zusätzlich zur Temperatur applizierte hohe elektrische Wechselfeldbeanspruchung können thermische Fluktuation aufgrund von thermodynamischen Vorgängen verursacht werden, infolgedessen örtlich begrenzt Veränderungen der Polymorphologie resultieren [Parpa1997, Sayers2000]. Entsprechend dem in Kapitel 3.5.3.2 angeführten analytischen Zusammenhang zwischen Dichte und Kristallinitätsgrad zeigt die obere Graphik in Bild 4.30 für die beiden untersuchten, unterschiedlichen Probenkollektive ähnliche Verläufe des Kristallinitätsgrades in Abhängigkeit der Alterungstemperatur. Dabei variiert der Kristallinitätsgrad in einem Bereich zwischen ungefähr 20 % und 70 %.

Aufgrund dieser vergleichsweise großen Bandbreite der ermittelten Resultate wurden exemplarisch zur tendenziellen Verifizierung der erhaltenen Kristallinitätsgrade für über eine Dauer von 5000 h vorbeanspruchte Kabelproben die Kristallinitätsgrade aus den Ergebnissen der FTIR-Spektroskopien unter Anwendung des in [Hendus1961] angegebenen formalen Berechnungsverfahrens bestimmt.

Prinzipiell kann die Bestimmung des Kristallinitätsgrades von teilkristallinen Polymeren auf mehrere Arten erfolgen. Neben der angewandten Dichtemessung sind auch Röntgenweitwinkelmessungen, IR-Spektroskopien oder kalorimetrische Verfahren („differential scanning calorimetry (DSC)“) gebräuchlich. Die mit den unterschiedlichen Methoden ermittelten Dichtewerte differieren in der Regel voneinander, da die weit verbreitete Vorstellung eines Zweiphasenmodells die tatsächliche Materialstruktur der teilkristallinen Werkstoffe nur begrenzt annähert. Speziell die interstitiellen Zonen zwischen den amorphen und kristallinen Domänen sprechen aufgrund ihrer endlichen Ausdehnung auf die verschiedenen Untersuchungsmethoden unterschiedlich an. Darüber hinaus berücksichtigen die Verfahren die häufig in kristallinen Bereichen vorhandenen Kristallbaufehler in unterschiedlicher Weise [Batzer1985, Schaumburg1997].

In Bild 4.31 sind die aus Dichtemessungen und FTIR-Spektroskopien ermittelten Kristallinitätsgrade im Vergleich gegenübergestellt. Es ist zu erkennen, dass die absoluten Zahlenwerte voneinander abweichen, und dass die Alterungstemperatur der maximalen Kristallinität unterschiedlich ist. Die Abweichungen der Resultate aus den FTIR-Spektroskopien voneinander sind auf den im Isolierstoffvolumen vorhandenen Temperaturgradienten zurückzuführen, infolgedessen sich grundsätzlich ähnliche Kurvenverläufe ergeben, die jedoch für die an Pos. 2 erzielten Ergebnisse hin zu höheren Alterungstemperaturen verschoben sind. Trotz der vorhandenen Unterschiede der mit Dichtemessungen und FTIR-Spektroskopien bestimmten Kristallinitätsgrade wird auch deutlich, dass der grundsätzliche Trend ver-

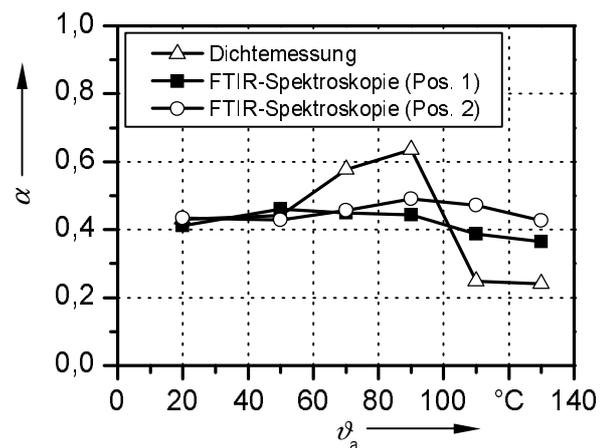


Bild 4.31: Kristallinitätsgrade α in Abhängigkeit von der Alterungstemperatur ϑ_a für verschiedene Bestimmungsverfahren ($E_a = 13,1$ kV/mm; $t_a = 5000$ h)

gleichbar ist. Einem Anstieg des Kristallinitätsgrades mit zunehmenden Alterungstemperaturen bis zu einem Maximalwert folgt bei weiterer Steigerung der thermischen Beanspruchung ein Abfall auf ein im Vergleich zur ausschließlich elektrischen Alterung geringeres Niveau. So nimmt der anhand von FTIR-Spektroskopien bestimmte Kristallinitätsgrad im Bereich von Pos. 1 z. B. im untersuchten Temperaturbereich um etwa 11 % ab.

Mit den in diesem Unterkapitel dargestellten Ergebnissen hinsichtlich der inneren Materialstruktur des untersuchten teilkristallinen Polymeren konnte gezeigt werden, dass die in den vorangegangenen Abschnitten festgestellten Einflüsse unterschiedlicher Vorbeanspruchungen auf ausgewählte Kenngrößen auf beanspruchungsabhängige Veränderungen der Polymorphologie zurückzuführen sind. Dabei ist der thermischen Materialbeanspruchung ein hohes Veränderungspotenzial zuzuordnen, das durch eine elektrische Beeinflussung des Materials nicht annähernd erreicht werden kann.

Die beobachteten Modifikationen der inneren Materialstruktur durch applizierte Alterungsbeanspruchungen verursachen auch Veränderungen im Wärmeleitvermögen des Thermoplasten. So kann infolge von unterschiedlichen Materialdichten nicht mehr von einer konstanten Wärmeleitfähigkeit λ als Materialparameter ausgegangen werden, wie Bild 4.32 veranschaulicht. Dort sind die Wärmeleitfähigkeiten von PE für unterschiedliche Materialdichten in Abhängigkeit der Temperatur dargestellt. Bei geringen Temperaturen existieren amorphe und kristalline Domänen im Isolierstoff, infolgedessen die Wärmeleitfähigkeit höher ist als im Fall hoher Temperaturen.

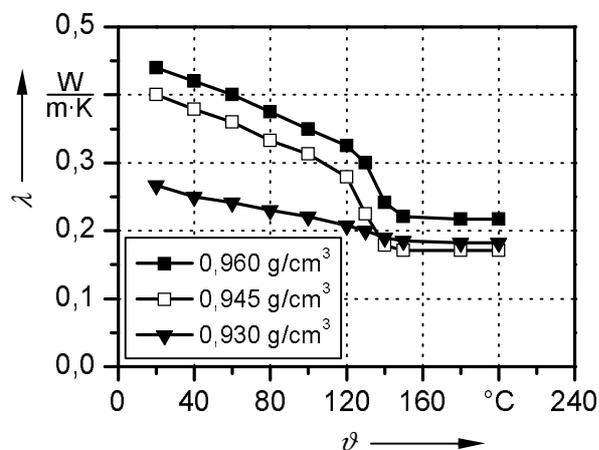


Bild 4.32: Wärmeleitfähigkeit λ von PE für verschiedene Materialdichten in Abhängigkeit von der Temperatur ϑ [Krollmann2000]

Dort tritt durch Veränderungen der Polymorphologie eine Verminderung der kristallinen Zonen ein, so dass aufgrund des nunmehr überwiegend amorphen Materials die Wärmeabfuhr erschwert wird. Durch die in amorphen Werkstoffen vermehrt auftretenden Störstellen werden Wärmewellen der Wärmeleitung gestreut oder reflektiert, womit eine Abnahme der Energieausbreitung verbunden ist. Als Störstellen sind dabei Vernetzungsknoten oder Kettenverschlaufungen zu betrachten [Krollmann2000].

Nach den Untersuchungen in [Boggs1998] weisen extrudierte Polymerwerkstoffe für Energiekabelanwendungen im Innenleiterbereich der Isolierung geringere Materialdichten auf als in der Nähe der äußeren Leitschicht.

Unter Beachtung der in Bild 4.32 dargestellten Zusammenhänge können daraus verminderte Wärmeleitfähigkeiten abgeleitet werden, die zu einer ungünstigeren Wärmeabfuhr speziell im bei induktiver Leiterheizung oder durch Strömwärmeverluste bei Lastfluss thermisch hoch beanspruchten Materialbereich führen.

5 Wissenschaftliche Visualisierung spärlich verteilter 3D-Daten aus Untersuchungen an laborgealterten VPE-isolierten Kabeln

Die wissenschaftliche Visualisierung dient der Darstellung komplexer wissenschaftlicher Daten, wobei die meistens aus Messungen oder numerischen Simulationen resultierenden großen Datenmengen mit geeigneten Verfahren aufbereitet werden [Bender2003]. Dabei erfolgt die Repräsentation der Daten in der Art, dass deren relevante Eigenschaften intuitiv erfasst, verstanden und bewertet werden können [Schumann2004]. Üblicherweise besitzen die Daten einen konkreten geometrischen Bezug und sind, da Simulationsberechnungen nur in seltenen Fällen zu kontinuierlichen Lösungen führen, in der Regel diskret. Es kann sich dabei z. B. um tomografische Daten aus dem medizinischen Bereich, meteorologische Datensätze oder Resultate aus aerodynamischen Simulationen handeln. Neben den geometrischen Daten sind weitere Werte, die auch als Attribute bezeichnet werden, hinsichtlich der Visualisierung zu berücksichtigen. Dies können beispielsweise Skalare, Vektoren oder auch mehrdimensionale Größen wie Tensoren sein. Die verschiedenen Dimensionen sowie die Strukturen und Attribute des vorliegenden Datensatzes sind daher zur Visualisierung mit Hilfe geeigneter Methoden auf nutzbare Datenstrukturen abzubilden [Bender2003].

5.1 Flächen- und Volumendarstellung

Das Spektrum der Visualisierungsmethoden ist aufgrund der Darstellungsmöglichkeiten komplexer Computergraphiken mit leistungsfähigen Computersystemen vielfältig entwickelt. Dabei kommen je nach Eigenschaft einer Datenmenge spezielle Verfahren zum Einsatz, wobei im Umfeld der wissenschaftlichen Visualisierung im Wesentlichen folgende Datenklassen unterschieden werden [Schumann2004]:

- Multiparameterdaten (Datenmenge, die Werte mehrerer Parameter beinhaltet),
- Volumendaten (skalare Datenmenge, die über einem 3D-Gitter angegeben ist),
- Vektordaten (mindestens ein Vektor je Gitterpunkt ist vorgegeben).

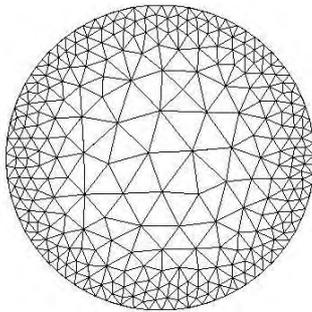
Im Hinblick auf die mit den verschiedenen Datenklassen verbundenen Visualisierungstechniken lassen sich Flächen- und Volumendarstellungen unterscheiden. Flächen werden im Bereich der Computergraphik oft zur Beschreibung volumenbehalteter Objekte¹⁶ verwendet, da eine direkte Visualisierung der Volumina wesentlich aufwendiger ist. Die dargestellten Flächen repräsentieren dabei die Rand- und Oberflächen eines Volumens. Zur Veranschaulichung beliebiger Flächen sind geeignete Repräsentationsvorschriften notwendig, die in Form von direkten mathematischen Formulierungen jedoch nur für wenige Objekte, wie z. B. Kugeln, existieren. Somit ergibt sich die Aufgabe, beliebige Flächenkonturen durch Zusammensetzen von einfachen Flächenstücken anzunähern. Dabei können die einzelnen Flächenstücke als separate, auf einen beschränkten Parameterbereich begrenzte mathematische Funktionen betrachtet werden. Häufig werden dafür polygonale Oberflächennetze oder komplexe Freiformflächen verwendet. Im Folgenden werden zunächst diese beiden Ansätze näher beschrieben.

¹⁶ Ein Objekt stellt die Begrenzung eines festen, nicht analytisch vorgegebenen Körpers auf der Basis unorganisierter Punkte dar.

5.1.1 Polygonale Oberflächennetze

Durch die Zusammenfügung mehrerer planarer Polygone entsteht ein Polygonnetz, das eine stückweise lineare Oberfläche aufweist. Dadurch lassen sich von linearen Flächen begrenzte Objekte gut repräsentieren. Jedoch können auf diese Weise in der Praxis häufig vorkommende komplexe Körpergeometrien mit gekrümmten Flächen nur durch eine ausreichend hohe Anzahl von Polygonen dargestellt werden, wodurch der Speicherplatzbedarf wesentlich erhöht wird (s. Bild 5.1). Prinzipiell muss die Polygonart nicht einheitlich festgelegt sein, wodurch ein besserer Approximationsgrad von komplexen Oberflächenstrukturen ermöglicht wird. Jedoch ist aus Sicht einer speichereffizienten Datenbehandlung ein einheitlicher Polygontyp vorteilhaft, da damit eine Optimierung der verwendeten Algorithmen erzielt werden kann.

Die Punkte eines Polygonnetzes werden durch Knoten repräsentiert, die auch als Scheitelpunkte oder Vertex bezeichnet werden. In polygonbasierten Datenstrukturen werden daher in jedem



Polygoneintrag Referenzen auf die zugehörigen Kanten und Scheitelpunkte abgelegt. In der Praxis finden fast ausschließlich Polygone in Form von Dreiecken Verwendung. Als Hauptgrund dafür sind deren planare und konvexe Eigenschaften zu betrachten, die eine einfache und stabile Implementierung von Berechnungsalgorithmen ermöglichen. Darüber hinaus ist die Hardwareunterstützung für die Darstellung von Dreiecksnetzen weitgehend etabliert und effizient [Bischoff2004].

Bild 5.1: Beispielhafte Darstellung eines Polygonnetzes einer gekrümmten Geometrie

Die Erfordernis ausreichend vieler Polygone zur möglichst genauen Approximation gekrümmter Flächen hat aufgrund der Handhabbarkeit großer Polygonnetze in der Datenverarbeitung die Entwicklung von geeigneten Verfahren zur

Polygonreduzierung initiiert und effiziente Darstellungen durch hierarchische Polygonmodelle auf der Basis von Kantenkontraktionsverfahren zugänglich gemacht [Kobbelt1998]. Im Umfeld der Netzdezimierung existieren verschiedene Algorithmen, wobei im Hinblick auf die Topologierhaltung eines Polygonnetzes vorwiegend inkrementelle Verfahren angewandt werden. Darunter sind Berechnungsvorschriften zu verstehen, die die Netzkomplexität durch iterative Applikation einfacher topologischer Operationen reduzieren, anstatt die gesamte Netzstruktur zu reorganisieren. In diesen Bereich fällt die Technik der progressiven Netze, die das Datenvolumen zur Speicherung und Übermittlung von Polygonnetzen durch Grundnetze mit wesentlich weniger Vertices unter Anwendung von Polygontransformation mit selektiver Detailtreue deutlich reduziert [Hoppe1996]. Prinzipiell kann eine Polygondatenreduktion als komplexe Optimierungsaufgabe betrachtet werden, wobei aufgrund der Vielzahl an Ableitungsmöglichkeiten von einem Originalnetz zu einem reduzierten Netz die Anwendung von Heuristiken verbesserte Lösungen erwarten lässt. Jedoch ist bei Netzdezimierungsverfahren eine Abhängigkeit der Reduktionsergebnisse von den Ausgangsdaten immer gegeben. Dabei lassen sich naturgemäß Objekte mit einfacher Topologie, wie größeren, schwach gekrümmten Bereichen, gut vereinfachen.

5.1.2 Freiformflächen

Im Vergleich zur Oberflächenmodellierung mit Polygonnetzen ergibt sich eine kompaktere Darstellung sowie eine bessere Approximation durch die Verwendung von Freiformflächen. Dabei handelt es sich um Parameterflächen, die auf der Basis von Polynomen gebildet werden. Sie ermöglichen die Modellierung beliebig geformter Objekte mit hoher Flexibilität. Allgemein werden implizite, explizite und parametrische Beschreibungsformen unterschieden, wobei parametrische Strukturen keine mehrdeutigen Lösungen aufweisen und eine Invarianz gegenüber Rotationsproblematiken besitzen. Die Bestimmung der Flächen erfolgt vorwiegend durch die Verwendung von Kurvendarstellungen auf der Basis des Tensorproduktansatzes. Damit ist eine Übertragung der theoretischen Formulierungen von Freiformkurven auf Flächenstrukturen möglich. Nachfolgend sind die relevanten analytischen Beschreibungsalgorithmen für Kurvendarstellungen zusammengefasst und daraus interessierende Flächenbeschreibungen abgeleitet [Hoschek1992, Piegl1995, Bender2003].

Polynomiale Darstellungen genügen in der Praxis gewöhnlich zur Beschreibung von Kurven und Flächen. Häufig werden dabei kubische Polynome verwendet, da damit echte Raumkurven- und -flächen beschrieben werden können. Eine Verwendung höherer Polynomgrade führt insbesondere bei Interpolationen zu unerwünschten Überschwingungseffekten.

Durch Einsatz von kubischen Polynomen mit *Bernstein*-Basis eröffnet sich die Möglichkeit, einen direkten Zusammenhang zwischen mathematischer und geometrischer Kurvenbeschreibung herzustellen. Dabei wird der Kurvenverlauf durch einen Polygonzug vorgegeben, der nur von wenigen veränderlichen Kontrollpunkten festgelegt ist (s. Bild 5.2). Eine Kurvendarstellung auf der Basis kubischer *Bernstein*-Polynome wird als *Bézier*-Kurve bezeichnet und ermöglicht eine interaktive Modellierung von Freiformkurven- und -flächen. Formal wird dabei der Verlauf $S(u)$ einer *Bézier*-Kurve vom Grad n beschrieben durch

$$S(u) = \sum_{i=0}^n B_{i,n}(u) P_i \quad (5.1)$$

$$\text{mit } B_{i,n}(u) = \binom{n}{i} u^i (1-u)^{n-i}, \quad (0 \leq u \leq 1) \quad (5.2)$$

wobei $n + 1$ Kontrollpunkte P_0, \dots, P_n gegeben sind und $B_{i,n}(u)$ ein Polynom mit *Bernstein*-Basis ist. Eine effiziente Methode zur Bestimmung der Punkte einer *Bézier*-Kurve ist die Berechnungsvorschrift nach *de Casteljau*. Dabei wird nach n -maliger rekursiver Interpolation der Kontrollpunkte P_0, \dots, P_n für einen gegebenen Parameter $u^* \in [0, 1]$ der Wert $S(u^*)$ der *Bézier*-Kurve ermittelt. Neben den zuvor bereits erwähnten nutzbaren positiven Eigenschaften von Kurvendarstellungen in *Bézier*-Form ist als nachteilig zu betrachten, dass eine Veränderung eines Kontroll-

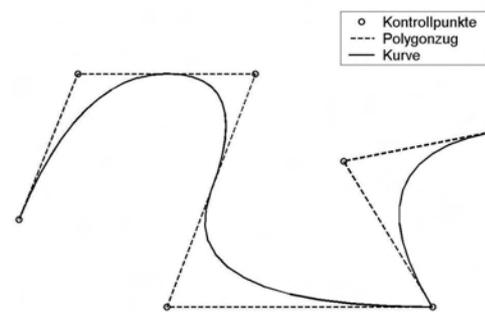


Bild 5.2: Polynomiale Kurve in *Bézier*-Darstellung

punktes den gesamten Kurvenverlauf beeinflusst. Darüber hinaus ist die Anzahl der Kontrollpunkte mit dem Grad der *Bézier*-Kurve gekoppelt, so dass ein Hinzufügen zusätzlicher Kontrollpunkte nur durch eine Erhöhung des Polynomgrades erreicht werden kann, womit jedoch nachteilige Überschwingungsproblematiken verbunden sind [Hoschek1992, Piegl1995, Bender2003].

Die durch die Verwendung von *Bézier*-Kurven vorstehend beschriebenen Nachteile können umgangen werden, wenn stattdessen B-Splines zur Kurvendarstellung herangezogen werden. Im Vergleich zu *Bézier*-Kurven weisen B-Splines andere Basisfunktionen auf, wodurch die Kurvenform lokal verändert werden kann und zusätzliche Kontrollpunkte ohne Polynomgraderhöhung hinzugefügt werden können. Die verwendeten Basisfunktionen der Ordnung j in der für Implementierungen vorteilhaften rekursiven Darstellung mit den Knoten u_i lauten:

$$N_{i,1}(u) = \begin{cases} 1 & \text{falls } u_i \leq u \leq u_{i+1} \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (5.3)$$

für $i = 0, \dots, n + m - 1; j = 1$ und

$$N_{i,j}(u) = \left(\frac{u - u_i}{u_{i+j-1} - u_i} \right) N_{i,j-1}(u) + \left(\frac{u_{i+j} - u}{u_{i+j} - u_{i+1}} \right) N_{i+1,j-1}(u) \quad (5.4)$$

für $i = 0, \dots, n + m - j; j > 1$.

Die Definition von B-Spline-Kurven ergibt sich durch Gewichtung der Kontrollpunkte P_i mit den Basisfunktionen $N_{i,m}(u)$ zu:

$$S(u) = \sum_{i=0}^n N_{i,m}(u) P_i. \quad (5.5)$$

B-Splines sind, wie Splines¹⁷ auch, aus einzelnen Segmenten zusammengesetzt, wobei die Abschnitte üblicherweise auf einer Sequenz von aufsteigenden Knoten $u_0 \leq u_1 \leq u_{n+m}$ definiert sind. Durch eine geeignete Wahl der Knoten kann die Differentiationsordnung an den Segmentübergängen beeinflusst werden, so dass Ecken oder andere Unstetigkeitsstellen dargestellt werden können. Die als Vektor dargestellten Knoten sind entweder uniform oder nicht-uniform verteilt. Sie stellen neben den Kontrollpunkten P_i einen wichtigen Interaktionsparameter zur Gestaltung von B-Spline-Kurven dar. Dabei besitzen bei nicht-uniformem Knotenvektor die Kontrollpunkte einen größeren Einfluss auf den Kurvenverlauf im Vergleich zu äquidistant verteilten Knoten. Der Einsatz von B-Spline-Kurven ermöglicht daher im Vergleich zur *Bézier*-Form mehr Freiraum bei der Kurvenmodellierung. Die Auswertung einer B-Spline-Kurve $S(u^*)$ an der Stelle u^* wird in der Regel nach der Vorschrift von *de Boor* vorgenommen, die als Verallgemeinerung des *de Casteljau*-Algorithmus betrachtet wird [Piegl1995, Bender2003].

Verallgemeinerte Darstellungen von B-Spline-Kurven finden als so genannte „non-uniform rational B-Spline (NURBS)“-Kurven Anwendung und repräsentieren mittlerweile den Standard in der Kurven- und Flächen-Beschreibungstechnik im Bereich der Computergraphik. Dabei handelt

¹⁷ glatte, stückweise aus Polynomen zusammengesetzte Funktion

es sich um B-Spline-Kurven mit rationalen Basisfunktionen sowie nicht-uniformen Knotenvektoren. Eine NURBS-Kurve der Ordnung m wird durch

$$S(u) = \sum_{i=0}^n R_{i,m}(u) P_i \quad (5.6)$$

$$\text{mit } R_{i,m}(u) = \omega_i N_{i,m}(u) / \sum_{j=0}^n \omega_j N_{j,m}(u) \quad (5.7)$$

definiert. Dabei beschreiben die P_i die Kontrollpunkte, $N_{i,m}(u)$ die B-Spline-Basisfunktionen der Ordnung m nach Gleichung 5.3 und 5.4 sowie ω_i die Gewichte. Darüber hinaus durchläuft der Parameter u das Einheitsintervall $[0, 1]$, so dass der Knotenvektor die Form

$$\underbrace{0 = \dots = 0}_m < u_m \leq \dots \leq u_n < \underbrace{1 = \dots = 1}_m \quad (5.8)$$

aufweist. Im Vergleich mit B-Spline-Kurven sind mit NURBS-Kurven Modellierungen von Spitzen und Ecken ohne Unstetigkeiten möglich, wodurch z. B. auch Kegelformen beschrieben werden können. Darüber hinaus ermöglichen die Gewichte als zusätzliches Kontrollelement eine intuitivere Formgestaltung als ein einfaches Verschieben der Kontrollpunkte. NURBS-Kurven erfordern jedoch mehr Speicherplatz und sind durch einen gegenüber B-Spline-Formen erhöhten Rechenaufwand gekennzeichnet.

Eine weit verbreitete Methode zur geometrischen Modellierung von Freiformflächen basiert, wie bereits erwähnt, auf dem Tensorproduktansatz. Dabei wird allgemein zunächst von einer Kurvendarstellung

$$S(u) = \sum_{i=0}^{n_u} F_i(u) P_i, \quad (a \leq u \leq b; i = 0, \dots, n_u) \quad (5.9)$$

mit Basisfunktionen $F_i(u)$ und $(n_u + 1)$ Punkten P_i ausgegangen. Eine Bewegung der Kurve $S(u)$ unter Tolerierung von Deformationen führt dazu, dass jeder Kontrollpunkt P_i eine Kurve mit Basisfunktionen $G_j(v)$ und Punkten $P_{i,j}$ beschreibt:

$$P_i(v) = \sum_{j=0}^{n_v} G_j(v) P_{i,j}, \quad (c \leq v \leq d; j = 0, \dots, n_v). \quad (5.10)$$

Durch Kombination der Gleichungen 5.9 und 5.10 ergibt sich eine Tensorproduktfläche

$$Q(u, v) = \sum_{i=0}^{n_u} \sum_{j=0}^{n_v} F_i(u) G_j(v) P_{i,j}, \quad (5.11)$$

wobei die Fläche eine vektorwertige Funktion der beiden Parameter u und v darstellt. Ohne Einschränkung der Allgemeinheit werden üblicherweise $a = c = 0$ und $b = d = 1$ gesetzt. Zur Verdeutlichung der Entstehung einer Tensorproduktfläche dient Bild 5.3. Aufgrund der Orthogonalität der Parameter u und v ergibt sich für ein festes $u = u^*$ zunächst die Kurve $S_{u^*}(v) = Q(u^*, v)$. Weiter kann analog für ein festes $v = v^*$ die Kurve $S_{v^*}(u) = Q(u, v^*)$ ermittelt werden. Die auf diese Weise bestimmten Kurven $S_{u^*}(v)$ und $S_{v^*}(u)$ schneiden sich in dem Flächenpunkt $Q(u^*, v^*)$. Somit können alle Flächenpunkte berechnet werden.

Mit Hilfe der vorangegangenen analytischen Beschreibungen von NURBS-Kurven und Tensorproduktverfahren erfolgt im weiteren Verlauf eine formale Angabe zur Berechnung von NURBS-Flächen. Sie repräsentieren eine Form von Freiformflächen mit hoher Flexibilität und können intuitiv mit Hilfe weniger Kontrollpunkte beschrieben werden. Wesentliche geometrische Transformationen können mit NURBS-Flächen durchgeführt werden, da die Menge der Kontrollpunkte invariant gegenüber affinen und perspektivischen Abbildungen ist. Komplexe Flächengeometrien können in der Praxis oft aus mehreren NURBS-Abschnitten zusammengesetzt werden, da die Stetigkeitsbedingungen ein einfaches Aneinanderfügen erlauben. Durch Modifizieren der Parameter Gewicht und Kontrollpunkte ist eine lokal begrenzte Änderung der Flächengeometrie möglich. NURBS-Flächen besitzen eine rechteckige Topologie und sind folgendermaßen analytisch definiert:

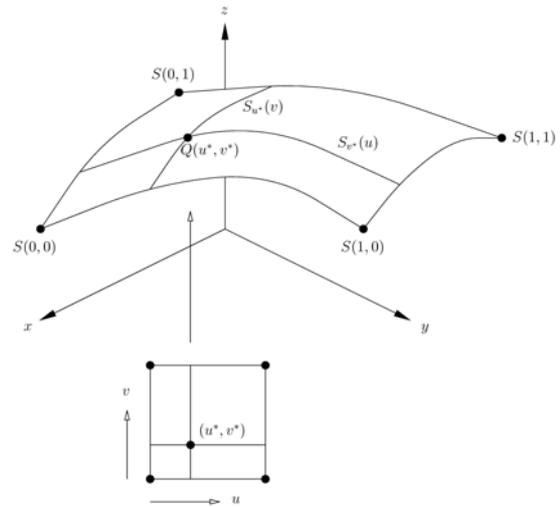


Bild 5.3: Isoparametrische Kurven auf einer Tensorproduktfläche [Piegl1995]

$$Q(u, v) = \left(\sum_{i=0}^{n_u} \sum_{j=0}^{n_v} \omega_{i,j} N_{i,m_u}(u) N_{j,m_v}(v) P_{i,j} \right) / \left(\sum_{i=0}^{n_u} \sum_{j=0}^{n_v} \omega_{i,j} N_{i,m_u}(u) N_{j,m_v}(v) \right) \quad (5.12)$$

- mit m_u : Ordnung in u -Richtung
- m_v : Ordnung in v -Richtung
- $P_{i,j}$: Kontrollpunkte
- $\omega_{i,j}$: Gewichte
- $N_{i,m_u}(u)$: nichtrationale B-Spline Basisfunktion auf $\{0, \dots, 0, u_{m_u}, \dots, u_{n_u}, 1, \dots, 1\}$
- $N_{j,m_v}(v)$: nichtrationale B-Spline Basisfunktion auf $\{0, \dots, 0, v_{m_v}, \dots, v_{n_v}, 1, \dots, 1\}$.

Eine biquadratische NURBS-Fläche mit 3×3 Kontrollpunkten ist beispielsweise in Bild 5.4 visualisiert. In Bild 5.4 a) weisen alle Gewichte der Kontrollpunkte den Wert 1 auf. Es handelt sich somit um eine B-Spline-Fläche uniformer Struktur. Im Vergleich dazu ist Bild 5.4 b) zu entnehmen

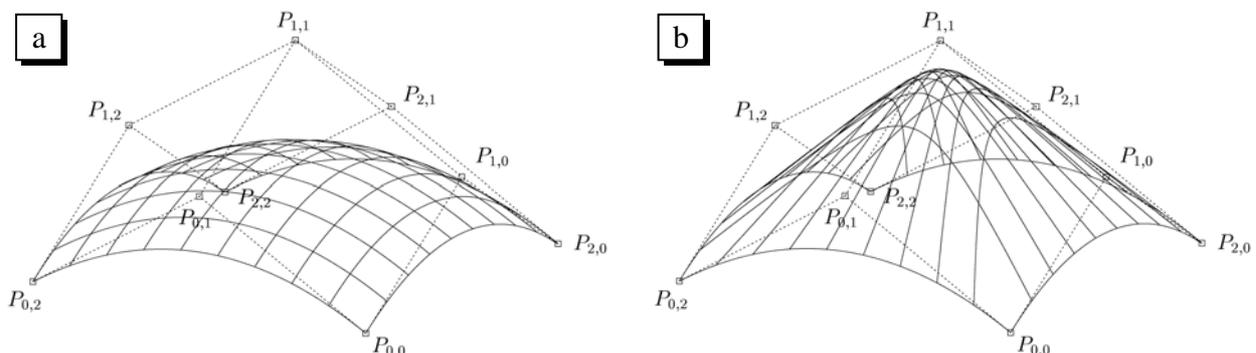


Bild 5.4: Biquadratische NURBS-Fläche mit 3×3 Kontrollpunkten
 a) alle Gewichte haben den Wert 1
 b) Gewicht $\omega_{1,1}$ hat den Wert 12

men, dass sich die Parameterlinien zu dem Kontrollpunkt hin verdichten, dessen Gewicht gegenüber den anderen Gewichten erhöht wurde.

Neben den zuvor beschriebenen Methoden in Form von Polygonnetzen und Freiformflächen zur Oberflächendarstellung hat sich in den letzten Jahren ein weiterer Ansatz zur Flächenrekonstruktion herausgebildet, der keine zusätzlichen Kenntnisse wie Datenstruktur, Art der Oberfläche oder Orientierungsinformationen verlangt, sondern nur die 3D-Koordinaten der darzustellenden Datenpunkte benötigt. Ausgehend von einer Menge von Punkten, die auf einer Oberfläche eines 3D-Objektes liegen und allgemein als Punktwolke bezeichnet wird, haben sich verschiedene Verfahren zur Flächenrekonstruktion entwickelt. Eine Methode erzeugt aus einer vorgegebenen Punktwolke eine Darstellung mit polygonen Flächen [Hoppe1994], wobei der Objektraum in ein regelmäßiges Voxelgitter zerlegt und anhand einer Vorzeichen behafteten Abstandsfunktion entschieden wird, innerhalb welcher Voxel¹⁸ die gesuchte Oberfläche verläuft. Ein anderes Verfahren realisiert die Visualisierung einer Punktwolke durch die Konstruktion von Fächerwolken um die einzelnen Datenpunkte [Linsen2001]. Das letztere Verfahren schließt eine Dreiecksnetzgenerierung aus und zeichnet sich somit durch eine erhöhte Effizienz im Berechnungsalgorithmus aus.

5.1.3 „scattered data modelling“

Einen grundsätzlichen Bestandteil der zuvor erläuterten Verfahren zur Modellierung geometrischer Objekte, die nicht analytisch vorgegeben sind, stellen Interpolations- und Approximationsaufgaben dar [Piegl1995]. Bei graphisch basierten Anwendungen der geometrischen Modellierung werden dazu oft Parameterdarstellungen von Flächen gegenüber impliziten Beschreibungsformen bevorzugt, da sich damit einzelne Flächenpunkte entlang von Parameterlinien sukzessive berechnen lassen. Zur Konstruktion von impliziten Flächen aus Punktdaten stehen jedoch auch geeignete Algorithmen zur Verfügung, die eine Approximation der Daten mit begrenzter Fehlertoleranz realisieren, eine möglichst geringe Zeit- und Speicherkomplexität in der Anzahl der Punkte herstellen sowie stabil gegenüber inkonsistenten und verrauschten Daten sind. Das mit impliziten Flächendefinitionen verbundene Lösen von zum Teil aufwendigen Gleichungssystemen wird dabei mit entsprechenden Berechnungsroutinen umgesetzt [Brüderlin2001].

Als ein wesentlicher praktischer Anwendungsbereich im Umfeld der geometrischen Modellierung hat sich die Technik des „scattered data modelling“ entwickelt, die sich mit der Interpolation und Approximation mathematischer Objekte auf der Basis unorganisierter diskreter Punkte befasst. Als mathematisches Objekt kann dabei die Begrenzung eines festen Körpers, ein Graph oder ein skalares Feld oder die Lösung einer partiellen Differentialgleichung betrachtet werden. Geeignete Approximationsverfahren basieren vielfach auf Spline-Techniken inklusive Netz erzeugender Triangulationen oder auf netzfreien Methoden, wie durch Verwendung radialer Basisfunktionen („radial basis functions“), die in Kapitel 5.1.3.2 bzw. 5.1.3.3 genauer beschrieben werden [Iske2004].

¹⁸ Als Voxel wird zum einen bei einem räumlichen Datensatz, der in kartesischen Koordinaten vorliegt, der diskrete Wert an einer xyz-Koordinate bezeichnet (Volumenpixel) und zum anderen eine quaderförmige Zelle innerhalb eines regelmäßig aufgeteilten Raumes verstanden.

Die Datenstrukturen der zu berechnenden Objekte können bis zu drei Dimensionen aufweisen, wobei im allgemeinen Fall als Zelle bezeichnete Körper zur Beschreibung der Datensätze dienen. Eine zu visualisierende Datenstruktur, auf die die verschiedenen Dimensionen, die Struktur des Datensatzes sowie Datenattribute abgebildet werden, kann in drei Bestandteile unterteilt werden:

- Zelltypen,
- Datenattribute,
- Beschreibung des gesamten Datensatzes als Ansammlung verschiedener Zellen.

Eine Klassifizierung der unterschiedlichen Zelltypen nach ihren Dimensionen ist in Tabelle 5.1 angegeben. Da für die verschiedenen Zellen jeweils Attribute existieren, werden Interpolationsalgorithmen benötigt, um diskrete Attributwerte innerhalb einer Zelle zu berechnen. Dafür sind Kenntnisse der Topologie der verwendeten Zelltypen erforderlich, die in der Praxis üblicherweise durch die Erzeugung geeigneter Netz- bzw. Gitterstrukturen gewonnen werden. Die Topologien von Datenstrukturen können sehr unterschiedlich sein und von strukturierten regelmäßigen Gittern bis hin zu völlig unstrukturierten Netzen reichen. Daher ist der Bestimmung effizienter Datenstrukturen und der Verwendung von Datenkompressionsverfahren eine entsprechende Bedeutung zuzuschreiben. Die Ergebnisse von numerischen Simulationsberechnungen werden häufig mit unstrukturierten Netzen beschrieben, die eine explizite Speicherung der Geometrie und der Topologie erfordern. Resultate aus Messungen, wie tomographische Daten aus dem medizinischen Bereich oder meteorologische Datensätze werden oft als gestreute Punkte („scattered data“) aufgefasst [Nielson1993, Bender2003].

Tabelle 5.1: Zelltypen und ihre Dimensionen [Bender2003]

Dimension	Zelltyp
0	Punkt, Punktmenge
1	Linie, Polygonzug
2	Dreieck, n -Eck
3	Tetraeder, Hexaeder, Pyramide,...

5.1.3.1 *Shepard*-Verfahren

Im Bereich des „scattered data modelling“ können allgemein lokale und globale Berechnungsmethoden unterschieden werden. Globale Ansätze erfordern bei Ergänzung oder Wegnahme eines Datenpunktes das Lösen eines neuen Gleichungssystems mit größerer Gleichungsanzahl, wohingegen lokale Verfahren nur Veränderungen in einem bestimmten Bereich aufnehmen. Jedoch bildet sich dieser Vorteil in der Praxis oft nicht aus, da reale, zufällig verteilte „scattered data“ komplett gegeneinander verglichen werden müssen, um deren jeweiligen Einfluss auf bestimmte Flächenbereiche herauszustellen. Die im Bereich der Interpolation von Stützpunkten auf einem Gitternetz eingesetzten Verfahren ermitteln für eine Menge von unregelmäßig verteilten Punkten eine oder mehrere Funktionen, die

- an den Stützpunkten einen Funktionswert besitzen, der genau dem ursprünglichen Datenpunkt entspricht und
- deren Summe eine stetige Oberfläche ergibt.

So führt beispielsweise die Methode nach *Shepard* die Bestimmung eines Wertes an einem Gitterpunkt auf eine gewichtete Mittelwertbildung der Stützpunkte zurück, wobei das Lösen eines

Gleichungssystem nicht erforderlich ist. Das Gewicht einzelner Stützpunkte wird dabei umgekehrt proportional zu ihrem Abstand hinsichtlich der zu ermittelnden Gitterpunkte betrachtet. Die Erfassung nichtlinearer Abnahmen der einzelnen Gewichtsanteile mit zunehmender Entfernung zwischen Stütz- und Gitterpunkt wird oftmals durch Annahme eines exponentiellen Verhaltens realisiert. Zur Vermeidung von Überlagerungseffekten bei eng nebeneinander liegenden Stützpunkten bezieht der *Shepard*-Algorithmus neben der Entfernung auch die Richtung der Stützpunkte zum Gitterpunkt in die Berechnung der Gewichtungsfaktoren mit ein. Nachteilig erweist sich bei der verhältnismäßig einfachen *Shepard*-Interpolation die Neigung des Berechnungsverfahrens, eine Oberfläche zu erzeugen, die im Bereich der Stützpunkte Ableitungsunstetigkeiten aufweist und globalen Charakter besitzt. Durch Erweiterungen des ursprünglichen Ausdrucks

$$F(x, y) = \sum_{k=1}^N \omega_k(x, y) f_k \quad (5.13)$$

einschließlich der Gewichtsfunktionen

$$\omega_k(x, y) = \left(1 / \left((x - x_k)^2 + (y - y_k)^2 \right)^{\mu/2} \right) / \sum_{k=1}^N \left(1 / \left((x - x_k)^2 + (y - y_k)^2 \right)^{\mu/2} \right) \quad (5.14)$$

mit N : Anzahl der zu interpolierenden Punkte
 f_k : Ordinaten

mit lokalen Approximanten $L_k(x, y)$ mit $L_k(x_k, y_k) = F(x_k, y_k)$ zu

$$F(x, y) = \sum_{k=1}^N \omega_k(x, y) L_k(x, y) \quad (5.15)$$

lassen sich dennoch im Rahmen allgemeiner Interpolationsaufgaben gute Ergebnisse erzielen. Diese Anpassung wird als modifizierter *Shepard*-Ansatz bezeichnet. Aus Gründen der Recheneffizienz wird häufig der Parameter $\mu = 2$ gesetzt [Hoschek1992, Lodha1997].

Die Anwendung von gewichteten Methoden zur Flächenapproximation, wie dem *Shepard*-Verfahren, ist grundsätzlich jedoch mit Nachteilen behaftet, da einzelne Gleichungsparameter oftmals willkürlich festgelegt werden können und klare Entscheidungsvorgaben zur Parameterwahl fehlen. Hinsichtlich der Wirksamkeit lokaler und globaler Interpolationsmethoden ist an dieser Stelle noch anzumerken, dass lokale Verfahren zur räumlichen Flächeninterpolation in der Regel eine spezielle Anordnung von Stützpunkten, wie z. B. auf einem regelmäßigen Gitternetz, benötigen, um verwertbare Ergebnisse zu erzielen. Derartige Anforderungen sind bei der Verarbeitung experimentell ermittelter Messdaten jedoch oft schwierig zu erfüllen.

5.1.3.2 *Delaunay*-Triangulation

Interpolations- und Approximationstechniken auf der Basis von Spline-Formen stellen ein weiteres Verfahren zur Flächenbeschreibung von „scattered data“ dar. Sie heben sich gegenüber der zuvor beschriebenen globalen Methode nach *Shepard* dadurch ab, dass sie eine Unterteilung des Untersuchungsgebietes in kleine Flächen erfordern, die lokalen Charakter aufweisen. Als Bezugsflächen für lokale Spline-Funktionen werden in der Regel Dreiecke verwendet, wobei zahlreiche Methoden zur Dreiecksgenerierung aus vorgegebenen Stützpunkten existieren. Eine opti-

male Basis für die Interpolation verstreuter Datenpunkte mit Spline-Funktionen auf einem unregelmäßigen Dreiecksnetz repräsentiert die *Delaunay*-Triangulation, da dabei immer eine global optimale Triangulierung erzeugt wird [Hoschek1992].

Geometrische Problemstellungen untersuchen meistens die Beziehungen von Objekten in einem Raum zueinander. So stellt sich z. B. die Frage, welchen Einfluss die Veränderung einer Objekteigenschaft auf die Umgebung hat, wobei eine Umgebung bzw. eine Nachbarschaft durch die Festlegung einer Metrik¹⁹ definiert werden kann. Die Axiomatik einer Metrik beinhaltet die Eigenschaften Identität, Symmetrie und Dreiecksungleichung. Mit ihrer Hilfe lässt sich eine geometrische Aufteilung des Raumes hinsichtlich einer Basis-Punktmenge vornehmen. Das topologische Abbild dieser als *Voronoi*-Darstellung bezeichneten Zerlegung kann durch einen Graphen veranschaulicht werden. Es existieren bestimmte Metriken, bei denen dieser Graph eine Triangulation der betrachteten Punktmenge abbildet und im Fall einer euklidischen Metrik als *Delaunay*-Triangulation angegeben wird. Eine *Delaunay*-Triangulation erfüllt u. a. folgende Bedingungen [Lodha1997, Bender2003, Iske2004]:

- Die Stützpunkte sind in der Art durch Linien verbunden, dass alle Stützpunkte Eckpunkte von Dreiecken darstellen.
- Der Umkreis eines Dreiecks enthält keine anderen Stützpunkte.
- Die Vereinigungsmenge aller Dreiecke repräsentiert die konvexe Hülle²⁰ aller Stützpunkte.

Eine konsequente Einhaltung der *Delaunay*-Triangulation maximiert den minimalen, in der Triangulation auftretenden Dreieckinnenwinkel, wodurch Vorteile bei Verfahren entstehen, die Interpolationen auf den Dreiecken der Triangulation erfordern. Unter Ausschluss bestimmter Sonderfälle, wozu die Erscheinung von mehr als drei Knoten auf einem Umkreis eines Dreiecks zu zählen ist, ist die inkrementell ablaufende *Delaunay*-Triangulation einer betrachteten Stützpunktmenge eindeutig. Bild 5.5 dient zur Veranschaulichung der beschriebenen Verma- schungstechnik. Es ist zu erkennen, dass jeder Eckpunkt einer *Voronoi*-Zelle von den Knoten der benachbarten Zellen gleich weit entfernt ist. Die Konstruktion eines Kreises um jeden dieser Eckpunkte verläuft durch die benachbarten Knoten und enthält keine weiteren Knoten. Dieser Kreis (s. Bild 5.6) stellt gleichzeitig den Umkreis um jedes *Delaunay*-Dreieck dar [Lodha1997, Bender2003, Iske2004].

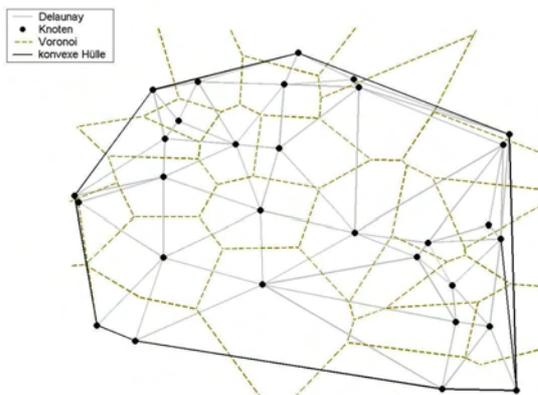


Bild 5.5: Dualität zwischen *Delaunay*-Triangulation und *Voronoi*-Diagramm

¹⁹ Eine Metrik bezeichnet im Allgemeinen ein System von Kennzahlen oder eine Methode zur Bestimmung einer quantifizierbaren Größe. In der Mathematik ist der Begriff als axiomatisch definiertes Maß für Abstände spezifiziert.

²⁰ Die konvexe Hülle einer Punktmenge beschreibt das kleinste konvexe Polygon, das alle Punkte der Punktmenge umschließt.

In der Praxis existiert eine Vielzahl von effizienten Algorithmen zur Erzeugung von *Delaunay*-Triangulationen, wie z. B. der *Bowyer-Watson*-Algorithmus, die meistens auf nur wenigen grundlegenden Routinen basieren. Im Rahmen dieser Berechnungsvorschrift wird über einen inkrementellen Einfügealgorithmus das Einbinden eines neuen Knotens in eine bereits bestehende *Delaunay*-Triangulation umgesetzt. Dazu wird zunächst die Menge der Dreiecke ermittelt, in deren Umkreis der einzufügende Knoten liegt. Diese Dreiecke bilden gemäß dem *Delaunay*-Kriterium ein zusammenhängendes Gebilde. Anschließend wird eine neue *Delaunay*-Triangulation generiert, indem die betreffenden Dreiecke aus der bestehenden Triangulation entfernt und die Ecken des daraus entstehenden leeren Bereichs mit dem neuen Knoten verbunden werden. Neue Knoten können dabei inner- und außerhalb der bereits bestehenden Triangulation liegen [Bowyer1981, Watson1981].

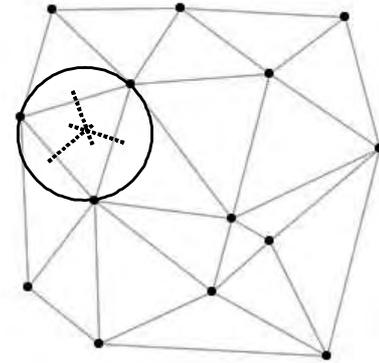


Bild 5.6: Schematische Skizzierung der Umkreisbedingung einer *Delaunay*-Triangulation

Eine Problematik der Spline-Interpolation auf unregelmäßigen Dreiecksnetzen besteht jedoch darin, dass nur die Gitterpunkte innerhalb des Dreiecksnetzes interpoliert werden können. Im Fall von polygonbezogenen Daten reicht das Untersuchungsgebiet jedoch meistens über die Grenzen des Dreiecksnetzes hinaus, da die Stützpunkte geometrische Stellvertreter der Polygone repräsentieren. Es können allerdings mit dem Verfahren von *Renka* die Gitterpunkte außerhalb des unregelmäßigen Dreiecksnetzes extrapoliert werden, indem die Funktionswerte am Ort des Interpolationspunktes mit der Spline-Funktion des nächstliegenden Dreiecks ermittelt werden. Der Kurvenverlauf wird somit unter der Annahme, dass sich der Kurventrend außerhalb des Dreiecksnetzes fortsetzt, nach außen hin verlängert. In peripheren Bereichen des Datensatzes besteht jedoch die Unsicherheit, dass extrapolationsbedingt entstehende lange, spitzwinklige Dreiecke zu Unstetigkeiten im Oberflächenverlauf führen, da vergleichsweise weit entfernte Stützpunkte in die Berechnung mit einfließen [Renka1984, Hoschek1992]. Bei einer Implementierung des Extrapolationsansatzes nach *Renka* wird in der Praxis oft dem Anwender über einen Indikator die abschließende Akzeptanz der evaluierten Werte überlassen. Dies ist allerdings im Hinblick auf die Eindeutigkeit der Berechnungsergebnisse nicht unbedingt wünschenswert.

Daher existieren hinsichtlich der Extrapolationsproblematik auch andere Verfahren, die zunächst zusätzliche Hilfspunkte derart interpolieren, dass erst diese Erweiterungswerte zusammen mit den ursprünglichen Datenpunkten die Basis für eine Dreiecksgenerierung bilden. Somit ist keine Extrapolation von außerhalb der konvexen Hülle der Datenmenge liegenden Punkten mehr erforderlich, da sich alle notwendigen Daten innerhalb des Dreiecksnetzes befinden [Montefusco1989]. Die interpolatorische Bestimmung geeigneter Hilfspunkte erfolgt bei dem Verfahren von *Montefusco* mit Hilfe des *Shepard*-Ansatzes. Weitere Modifikationsmöglichkeiten bezüglich der erlaubten Interpolation zusätzlicher Hilfsdaten wurden aufgrund von Erkenntnissen aus praxisrelevanten Datensätzen realisiert, die dem Bereich der Modellierung geographischer Datensätze entnommen wurden. Somit können auch spezielle Besonderheiten der Eingangsdaten, wie eine stark ungleichmäßige Verteilung der Punkte in eng begrenzten Bereichen, in geeigneter

Weise berücksichtigt werden. Aus den Erfahrungen in der Anwendung des Verfahrens nach *Montefusco* lässt sich ableiten, dass es hinsichtlich der durch das Hinzufügen zusätzlicher Hilfspunkte induzierten Fehler günstiger ist, wenn Hilfspunkte weniger weit von den Stützpunkten entfernt liegen.

Eine Vorgabe von Freiflächen und Zwangskanten eröffnet eine weitere verallgemeinernde Möglichkeit zur Anpassung der *Delaunay*-Triangulation an die Eigenschaften von in der Praxis vorliegenden Datensätzen. Dadurch können beispielsweise Bereiche, für die keine Daten vorliegen, oder für die geeignete Interpolationen nicht anwendbar sind, trotzdem mit in das Beschreibungsgebiet einbezogen werden. Diese als „constrained“ *Delaunay*-Triangulation bezeichnete Abwandlung des ursprünglichen Verfahrens bleibt lokal begrenzt und findet technische Anwendung durch explizit vorgegebene Randfunktionen. Auch ein nachträgliches Einfügen von derartigen Zwangskanten in bereits existierende Dreiecksnetze ist möglich [Hoschek1992, George1998].

Ursprünglich stützen sich *Delaunay*-Triangulationen zur Modellierung von verteilten Datenpunkten im Bereich der Flächendarstellungen auf die Verwendung von Spline-Funktionen, wobei zur Erzeugung stetiger bzw. glatter Oberflächen meistens quadratische oder kubische Polynomfunktionen angesetzt werden. Verbreitet wird jedoch auch durch die Anzahl der zu interpolierenden Punkte der Grad der verwendeten Polynomfunktion bestimmt. Dadurch kann es insbesondere bei höheren Polynomgraden in den Randbereichen des Interpolationsgebietes zu unerwünschten Oszillationseffekten kommen. Eine größere Menge an Interpolationspunkten trägt daher nicht zwingend zu einer höheren Qualität der Interpolationskurve bei, so dass auch andere Interpolationsansätze hinsichtlich ihrer Praxistauglichkeit zu prüfen sind. Dabei bilden neben dem Bewertungsparameter Glattheit auch Kenngrößen wie Berechnungsdauer und Approximationsgenauigkeit wesentliche Evaluationsgrößen. Vor dem skizzierten Hintergrund werden im Folgenden kubische Spline- und Hermite-Verfahren zur stückweise polynomialen Interpolation im Rahmen von Flächenmodellierungen miteinander verglichen.

Hermite-Interpolationen weisen gegenüber Spline-Ansätzen den Vorteil auf, dass neben den zu interpolierenden Datenpunkten auch die dort vorliegenden ersten Ableitungen korrekt interpoliert werden. Daher treten deutlich weniger Oszillationseffekte an den Stützpunkten auf [Kahaner1989]. Da Spline-Funktionen durch die Interpolationsanforderungen allgemein unterbestimmt sind, sind zusätzliche Informationen zur korrekten Interpolation notwendig, wie es durch Randwertangaben realisiert werden kann. Diese Tatsache wird jedoch in kommerziellen Programmpaketen mit Spline-Interpolationen oftmals nicht berücksichtigt und durch interne Annahmen standardmäßig umgesetzt. Es ergibt sich daher als Alternative zu kubischen Hermite-Interpolationen die Anwendung von kubischen Spline-Interpolationen mit vollständigen Randbedingungen, d. h. der Interpolant ist stückweise kubisch und global zwei mal stetig differenzierbar. Da kubische Hermite-Interpolationen die Informationen hinsichtlich der verfügbaren Ableitungen auch im Inneren ausnutzen können, ist dieser Ansatz für Approximationen prinzipiell besser geeignet. Der Spline-Ansatz benötigt im Vergleich mehr Stützstellen, um eine vorgegebene Approximationsgenauigkeit zu erreichen [Kahaner1989, Moler2004].

Bei der Implementation von stückweise kubischen Hermite-Interpolationen verteilter Datenpunkte werden hinsichtlich der Ableitungsberücksichtigung zwei wesentliche Berechnungsschritte ausgeführt. Weisen im Fall einer linearen Verbindung zwischen dem aktuell betrachteten

Datenpunkt und seinen beiden benachbarten Werten die entsprechenden Geradensteigungen ein unterschiedliches Vorzeichen auf, so liegt ein diskretes lokales Extremum vor und die interpolierte Tangentensteigung im Datenpunkt selbst nimmt den Wert Null an. Haben hingegen die betrachteten Geradensteigungen das gleiche Vorzeichen, so ergibt sich die Tangentensteigung im betrachteten Datenpunkt aus dem Mittelwert der beiden angrenzenden Steigungen [Moler2004].

Eine Umsetzung der beiden zuvor beschriebenen Interpolationsverfahren, die bei der Bildung von *Delaunay*-Triangulation zur Flächenbeschreibung von „scattered data“ angewendet werden können, zeigt exemplarisch Bild 5.7. Als Datengrundlage dienen dabei experimentell ermittelte Messwerte sowie mit dem Verfahren von *Montefusco* bestimmte zusätzliche Stützpunkte.

Der nebenstehenden Darstellung kann entnommen werden, dass die Verwendung von Hermite-Interpolationen zu einem deutlich glatteren Kurvenverlauf mit wesentlich geringerer Oszillationsneigung an den zu interpolierenden Datenwerten führt. Daher wurde diese Methode im weiteren Verlauf dieses Hauptabschnittes zur Ermittlung zusätzlicher Stützpunkte in Verbindung mit dem Ansatz von *Montefusco* herangezogen, um Oberflächen durch spärlich verteilte Datenpunkte möglichst glatt und genau zu bestimmen.

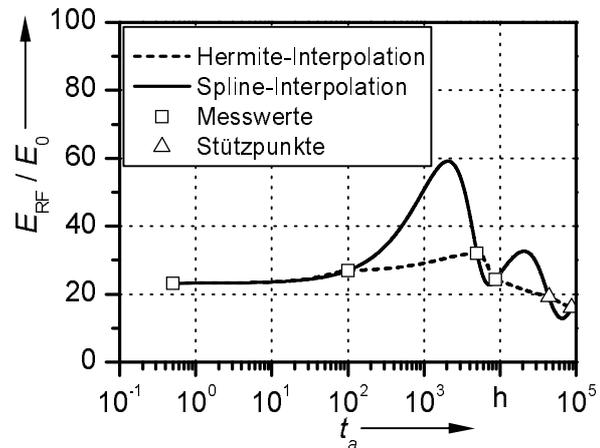


Bild 5.7: Vergleich von Hermite- und Spline-Interpolationen von auf die Betriebsfeldstärke E_0 bezogenen elektrischen Restfestigkeiten E_{RF} von VPE-Modellkabeln in Abhängigkeit von der Alterungsdauer t_a ($E_a = 13,1$ kV/mm; $\vartheta_a = 20$ °C)

5.1.3.3 Radiale Basisfunktionen (RBF)

Neben den in den beiden vorangegangenen Unterkapiteln beschriebenen Verfahren zum Themenkreis „scattered data modelling“ erfolgt in diesem Abschnitt die Erläuterung der Funktionsinterpolation mit Hilfe von radialen Basisfunktionen. Diese Methode ist auf die Besonderheiten der Interpolation vorgegebener Daten von Funktionen mit mehreren Variablen abgestimmt und wird erfolgreich im Bereich von Flächenformulierungen spärlicher Daten eingesetzt. Im Gegensatz zu den zuvor beschriebenen Verfahren erfordert die Verwendung von RBF keine Informationen hinsichtlich der Verbindungsart der einzelnen Datenpunkte untereinander [Lodha1997]. Darüber hinaus stellt sich eine praktische Effizienz aufgrund der Glattheit und Konvergenz von geeigneten positiv definiten Basisfunktionen ein, die wesentlich durch die translations- und rotationsinvariante Charakteristik der Interpolanten verursacht wird und eine Beschränkung auf reguläre Netze überflüssig macht. Diese Gegebenheit wird durch die geringe Kondition²¹ von RBF unterstützt [Roussos2005]. Weiterhin zeichnen sich RBF dadurch aus, dass insbesondere Datenstrukturen mit größeren Bereichen ohne existierende Werte variabel modelliert werden können [Buhmann2003].

²¹ Der Begriff der Kondition eines mathematischen Problems beschreibt die Empfindlichkeit der Lösung gegenüber Störungen der Eingangsdaten.

Eine Interpolation in höheren Raumdimensionen wird jedoch im Bereich der numerischen Mathematik als schwerwiegendes Komplexitätstheoretisches Problem charakterisiert, da das Erreichen gleich bleibend guter Ergebnisse in jeder Raumdimension nur durch eine exponentielle Erhöhung des Daten- und Berechnungsaufwands realisiert werden kann. Diese Gegebenheit führt insbesondere bei der Modellierung vieler Datenpunkte zu zeitaufwendigen Berechnungen [Rousos2005]. Aufgrund der Interpolationsvariabilität ergibt sich bei spärlicher Datengrundlage jedoch ein gutes Verhalten hinsichtlich der Approximationsgenauigkeit.

Als Nachteil der Anwendung von RBF zur Flächenapproximation von „scattered data“ ist anzuführen, dass die auftretenden Interpolationsmatrizen üblicherweise voll besetzt sind und somit entsprechend viele Auswertungen der Basisfunktion erfordern. Eine Vermeidung der damit verbundenen Schwierigkeiten lässt sich durch den Einsatz von RBF mit kompaktem Träger erreichen, die vor allem zu einer Verbesserung der Kondition führen. Dabei ist jedoch die Akzeptanz einer von der zu Grunde liegenden Raumdimension abhängigen Darstellung erforderlich. Eine Steigerung der Approximationsgenauigkeit ist zusätzlich durch eine datenabhängige Skalierung der verwendeten Träger möglich [Wendland1996]. Des Weiteren sind auch spezielle Verfahren zur Vorkonditionierung verfügbar. Sie ermöglichen eine Handhabung großer und ungleichmäßig verteilter Daten. Eine Beschreibung von „multilevel“ Approximationen kann [Iske2004] entnommen werden. Darüber hinaus existieren für derartige Eingangsdaten auch spezielle Auswertungsverfahren. Für weitere Ausführungen dazu sei jedoch an dieser Stelle auf die Beschreibungen in [Powell1992] verwiesen. Allgemein werden im Fall global unterstützter RBF, die keine direkte Lösung linearer Gleichungssysteme beinhalten, iterative Verfahren oder hierarchische Unterteilungen zur Reduktion der Systemkomplexität eingesetzt [Wendland2006].

Neben der beschriebenen Verwendung von RBF im Bereich multivariater Approximationen verteilter Daten existieren weitere Anwendungsfälle, deren Aufgabe gleichsam in einer möglichst genauen Rekonstruktion von Funktionen aus gegebenen Werten liegt. So werden RBF auch bei Approximationen im Bereich des Lernabschnitts neuronaler Netze eingesetzt sowie bei numerischen Lösungen partieller Differentialgleichungen verwendet [Buhmann2003].

Zum Abschluss der thematischen Eingliederung der Modellierungstechnik mit RBF ist darauf hinzuweisen, dass kein multivariates Approximationsverfahren eine Kombination aus hoher Genauigkeit und numerisch stabiler Interpolation ermöglicht. Diese auch als Unsicherheitsbeziehung bezeichnete Inhärenz ist daher zu berücksichtigen, wenn die vorliegenden Eingangsdaten bewertet werden und Entscheidungen bezüglich deren weiterer Behandlung getroffen werden müssen.

Im Folgenden werden die wesentlichen analytischen Formulierungen radialer Basisfunktionen beschrieben. Als Grundlage dazu dienen die Angaben in [Powell1992, Schaback1995, Buhmann2003].

Multivariate Approximationen mit RBF verwenden als Interpolante oder Approximante Linearkombinationen, die aus Übersetzungen einer festen Basisfunktion bestehen. Üblicherweise wird dabei die Basisfunktion als radial angenommen. Ihr Wert an einer vorgegebenen Stelle x hängt somit nur von der euklidischen Norm²² $\|x\|$ von x ab. Daraus ergibt sich, dass eine univariate Funktion als Funktion in der Norm als radiale Basisfunktion in einer oder aber auch jeder vorgegebenen Raumdimension existieren kann. Als Eingangswerte werden multivariat verteilte Daten $X = \{x_1, \dots, x_N\}$ mit N paarweise unterschiedlichen Punkten x_1, \dots, x_N zusammen mit N Punkten y_1, \dots, y_N im \mathfrak{R}^d betrachtet. Die Punkte x_1, \dots, x_N werden auch als Zentren charakterisiert. Eine interpolierte Fläche dieser Daten liegt im Bereich einer glatten Funktion s mit

$$s(x_k) = y_k \quad (5.16)$$

mit $1 \leq k \leq N$.

Eine approximierte Fläche liegt daher dann vor, wenn die Abstände $s(x_j) - y_j$ mit $1 \leq j \leq N$ minimal werden, d. h.

$$\sum_{k=1}^N \|s(x_k) - y_k\|_2^2 \quad (5.17)$$

soll minimal werden. Mit Hilfe optimierter numerischer Approximationsverfahren kann die Funktion s damit als gewichtete Summe von N radialen Basisfunktionen wie folgt beschrieben werden:

$$s(x) := \sum_{j=1}^N b_j \cdot \phi(x - x_j) \quad (5.18)$$

mit b_j : Kontrollpunkte im \mathfrak{R}^d
 ϕ : positiv definite Funktion im \mathfrak{R}^d .

Durch Lösen eines linearen Gleichungssystems werden die einzelnen Kontrollpunkte b_j bestimmt. Für geometrische Anwendungen ist es geeignet, wenn die Lösung von Gleichung 5.16 unabhängig von der euklidischen Transformation der Daten ist. Daher sollte die Funktion ϕ radial sein und somit durch

$$\varphi(x) = \phi(\|x\|_2) \quad (5.19)$$

beschrieben werden können. φ ist dabei eine univariate Funktion und wird generell als Basisfunktion bezeichnet. Für den allgemeinen Fall im dreidimensionalen Raum

$$\|x_k\| = r_k = \sqrt{(x - x_k)^2 + (y - y_k)^2 + (z - z_k)^2} \quad (5.20)$$

sind aufgrund von praktischen Anwendungserfahrungen in der entsprechenden Literatur die in Tabelle 5.2 zusammengefassten Funktionen nutzbar. Einige der aufgeführten RBF beinhalten einen zusätzlichen Gleichungsparameter c , der auch als „shape parameter“ bezeichnet wird. In Kapitel 5.2 werden zur Bestimmung passender Werte für c sowie zum daraus abzuleitenden Ein-

²² Die Norm $\|x\|$ von x ist als $\|x\| = \sqrt{x \cdot x}$ definiert.

fluss dieses Gleichungsterms auf die Approximationsgenauigkeit weitere Ergebnisse vorgestellt. Die entsprechende Literatur beinhaltet hinsichtlich der geeigneten Wahl des „shape parameter“ keine vollständig bewiesenen Vorgaben. So wurde beobachtet, dass sich mit größeren positiven Werten für c der Einfluss der Raumdistanz $\|x_k\|$ auf das Approximationsergebnis verringert, so dass die ermittelte Basisfunktion an den betreffenden Raumpunkten steifer wird [Buhmann2003]. Insbesondere für $c \rightarrow \infty$ erhält man zunehmend flache und somit steife Basisfunktionen, für die eine numerisch stabile Bestimmung mit hinreichender Genauigkeit zumeist nicht möglich ist, da das zu lösende Gleichungssystem schlecht konditioniert ist. Für diesen Fall wird in [Fornberg2004] ein Algorithmus vorgestellt, der im Wesentlichen darauf aufbaut, dass der „shape parameter“ c nicht nur positive reale Werte annehmen sondern auch komplex sein kann. Es ist dabei jedoch zu berücksichtigen, dass die Selektion von c auch von der Struktur der Eingangsdaten abhängig ist. So spielen die Anzahl sowie die Verteilung der einzelnen Datenpunkte eine Rolle. In [Rippa1999] wird eine weitere vorwiegend auf numerischen Optimierungsverfahren basierende Berechnungsvorschrift vorgestellt, die diese Einflüsse beachtet.

Tabelle 5.2: Bedingt positiv definite Funktionen, die als radiale Basisfunktionen $\varphi(r_k)$ verwendet werden können ($c > 0$)

radiale Funktion $\varphi(r_k)$	Typ
$\varphi(r_k) = r_k$	lineare Funktion
$\varphi(r_k) = \sqrt{r_k^2 + c^2}$	Multiquadrik
$\varphi(r_k) = \left(\sqrt{r_k^2 + c^2}\right)^{-1}$	inverse Multiquadrik
$\varphi(r_k) = r_k^3$	kubische Funktion
$\varphi(r_k) = r_k^2 \log r_k$	„thin plate spline“
$\varphi(r_k) = e^{-\left(r_k^2 / c^2\right)}$	Gaussfunktion

Um „scattered data“ in mehreren Dimensionen zu modellieren, kann grundsätzlich jedes der drei in den vorangegangenen Unterkapiteln näher beschriebenen Verfahren angewandt werden. Jedoch sind dabei die aufgezeigten Vor- und Nachteile gegeneinander abzuwägen. Zur Approximation räumlich verteilter Daten, wie sie z. B. durch zustandsbeschreibende Kennwerte aus diagnostischen Messungen oder Lebensdaueruntersuchungen an VPE-Isolierungen für Energiekabel nach definierter Alterungsbeanspruchung vorliegen können, wurde in dieser Arbeit die Methode mit radialen Basisfunktionen eingesetzt, da dieser Ansatz als entscheidenden Vorteil keine Informationen hinsichtlich der Verbindungsart zwischen den einzelnen Volumendatenpunkten erfordert und somit im Wesentlichen ohne unbestimmte Gleichungsparameter arbeitet.

Mit Hilfe dieser Technik zur Modellierung von Oberflächen ergibt sich ein anderer Ansatz zur Beschreibung so genannter Lebensdauerolumina, als die in der Literatur beschriebenen „multi-factor aging“-Modelle [Gjaerde1997, Mazzanti1997]. Die dort diskutierten Modellformulierungen zeichnen sich durch das Vorliegen analytischer Ausdrücke zur Bestimmung der Lebensdauer von festen Isolierstoffen aus, die separat oder kombiniert elektrisch und thermisch beansprucht werden. Dabei enthalten die formalen Gleichungsterme frei wählbare Parameter, für die vorwiegend nur empirisch basierte Angaben gemacht werden. Allerdings zeigen auch Ansätze, diese Lücke in analytischer Hinsicht zu schließen, dass unter Berücksichtigung von Synergieeffekten

formale Vorschläge zur Ermittlung so genannter Synergie-Faktoren nicht ohne Angabe von variablen Gleichungstermen auskommen. Diese Größen dienen im Wesentlichen dazu, die unter Verwendung der analytischen Formeln ermittelten Ergebnisse an vorliegende experimentelle Daten anzupassen [Mazzanti1996]. Damit reduziert sich die Transparenz der Gleichungsform und es bleibt offen, ob bestimmte Kriterien für die Eingangsdaten vorliegen müssen, damit ein akzeptables Modellierungsergebnis erreicht werden kann, und ob die freien Gleichungsterme darüber hinaus als Materialparameter zu betrachten sind. Weiterhin bestehen in diesem Zusammenhang nach wie vor aktuelle Fragenstellungen hinsichtlich einer geeigneten Berücksichtigung nicht linearer Materialdegradationen bei der Entwicklung analytischer Lebensdauermodelle [Bartnikas2000].

Die Komplexität bei der analytischen Beschreibung von Alterungsprozessen in elektrischen Betriebsmitteln wird wesentlich durch die Überlagerung der Einflüsse von verschiedenen Beanspruchungsgrößen auf die Betriebsfähigkeit der jeweils betrachteten Anlagen hervorgerufen. Aus der Superposition unterschiedlicher Alterungsgrößen gehen differenzierte Wechselwirkungen untereinander hervor. Daher stellt die Erfassung derartiger Synergien ein wesentliches Ziel von Arbeiten auf dem Gebiet der Alterungsmodellierung dar. In der Literatur existieren Lebensdauermodelle vorwiegend phänomenologischer Art, die jedoch durch das Fehlen physikalischer Signifikanz gekennzeichnet sind, und physikalische Modellansätze, die auf thermodynamische Gesetzmäßigkeiten zurückgreifen und damit überwiegend auf Wahrscheinlichkeitsbetrachtungen basieren [Agarwal1995, Gjaerde1997]. Vor dem skizzierten Hintergrund über Arbeiten zur Lebensdauermodellierung fester Isolierstoffe hebt sich der im Folgenden beschriebene Ansatz deutlich ab. Es wird keine analytische Beschreibung zur Lebensdauerberechnung angegeben, sondern ein Verfahren vorgestellt, das als Eingangsgrößen Kennwerte nutzt, die mit Hilfe von diagnostischen Untersuchungen an VPE-isolierten Modellkabeln nach definierten Alterungsbeanspruchungen ermittelt wurden.

Im nächsten Unterkapitel wird dazu eine Vorgehensweise zur Visualisierung von Volumendaten beschrieben, deren Begrenzung durch die zuvor mit Hilfe von RBF bestimmte Oberfläche sowie die entsprechenden Randflächen für die Beanspruchungsparameter $E_a = t_a = 0$ gegeben ist. Die jeweiligen volumetrischen Werte werden auf der Basis der Oberflächendaten ermittelt. Somit wirken sich Ungenauigkeiten in der Flächenapproximation auch auf die Modellierung der Volumendaten aus. Daher ist bei der Flächenbestimmung sowohl in der Interpolation von zusätzlich zu den experimentellen Werten verwendeten Stützstellen als auch in der Verfahrensfestlegung der Flächenbestimmung selbst eine hohe Genauigkeit gefordert. Zu diesem Zweck wurden die wesentlichen wählbaren Parameter der RBF intensiv hinsichtlich des jeweiligen, damit erzielten Interpolationsfehlers untersucht. Der Interpolationsfehler F_{int} wurde dabei nach der Gaußschen Fehlerfortpflanzung für systematische Fehler

$$\Delta y^2 = \sum_{i=1}^N (\partial y / \partial x_i)^2 \cdot \Delta x_i^2 \quad (5.21)$$

mit Δy : Gesamtfehler F_{int} nach Fehlerfortpflanzung
 x_i : fehlerbehaftete Messgröße
 Δx_i : Fehler der Messgröße x_i

ermittelt.

5.1.4 Visualisierung von Volumina

Die wesentliche Aufgabe der Volumenvisualisierung besteht in der Darstellung, Repräsentation und Manipulation von Volumendaten, so dass wichtige Eigenschaften der abgebildeten dreidimensionalen Daten intuitiv erfassbar sind und innere, sonst verborgene Zusammenhänge aufgedeckt werden [Brodlie2001]. Volumendaten stellen dabei skalare Daten auf einem regelmäßigen dreidimensionalen Gitter dar, wobei jedem Gitterpunkt genau ein Wert zugeordnet ist [Schumann2004]. Als weit verbreitete Anwendungsfelder mit Fragestellungen zur Volumendarstellung sind Bereiche der Visualisierung medizinischer Daten, die Abbildung von geographischen Messgrößen oder Ergebnisse aus numerischen Simulationsberechnungen bekannt [Brodlie2001, Bender2003, Schumann2004]. Eine allgemeine Veranschaulichung des Arbeitsprozesses zur Visualisierung von Volumendaten ist in Bild 5.8 zusammengefasst.

Es können bei der Modellierung und Visualisierung derartiger, auch als trivariate Daten bezeichneter Größen weitere strukturelle Unterteilungen vorgenommen werden. Zum einen beschreiben unabhängige Variablen die Dimensionen, die den Bezugsraum festlegen. Sie werden auch als

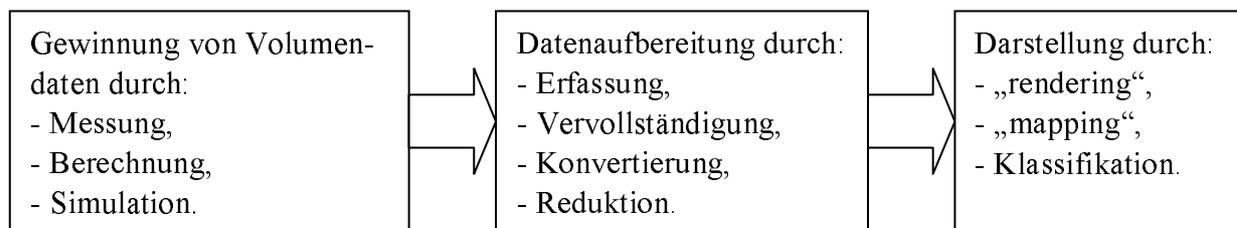


Bild 5.8: Visualisierungspipeline von Volumendaten [Theisel2001, Schumann2004]

mehrdimensionale Daten bezeichnet und charakterisieren die Topologie des zu modellierenden Objektes. Zum anderen kennzeichnen abhängige Variablen als multivariate Daten die Parameter, die im Bezugsraum erhoben werden. In diesem Zusammenhang werden die in der entsprechenden Fachliteratur üblichen Begriffe „surface-on-surface data“ für den Fall verwendet, dass die Lage der unabhängigen Daten im dreidimensionalen Raum auf eine zweidimensionale Teilmenge beschränkt ist, und „volumetric data“ zur Beschreibung von hinsichtlich ihrer Position im dreidimensionalen Raum nicht eingeschränkten Daten [Lodha1997]. Eine Visualisierung dieser Datengruppierungen setzt voraus, dass im Rahmen der Modellierung die darzustellenden Datenpunkte interpoliert bzw. approximiert wurden und in Form von Abbildungen auf einem regelmäßigen Gitter als Eingangsdaten zur Verfügung stehen. Die in diesem Abschnitt zusammengefassten Anmerkungen zur Visualisierung von Volumina basieren auf „volumetric data“, da bei einer Modellierung des Lebensdauervolumens von polymeren Isolierstoffen keine Beschränkung der einzelnen Datenpunkte hinsichtlich ihrer Position im dreidimensionalen Raum gegeben ist. Im Allgemeinen stehen folgende Visualisierungsmethoden für „volumetric data“ zur Verfügung [Nielson1993, Lodha1997]:

- Gebietszerlegung,
- Schnitt,
- Kontur,
- „volume rendering“.

Bei einer Gebietszerlegung wird in der Regel mit Hilfe von Objekten in Form von Kugeln oder Würfeln versucht, das darzustellende Volumen entsprechend genau auszufüllen. Dabei wird jedem einzelnen Objekt eine Farbe zugeordnet, die die abhängige Größe abbildet. Die Einzelkörper werden jeweils durch ihre Raumdimension beschrieben. Eine Abbildung von Volumendaten auf geometrische Primitive mit Hilfe von Klassifikationen wird auch als „mapping“ bezeichnet. Der Ansatz der Gebietszerlegung erfordert eine entsprechende Computerhardware, da die Rechenzeit aufgrund der multiplikativen Abbildung des Gesamtobjektes durch viele Einzelobjekte bei hohen Auflösungen und somit großer Genauigkeit leicht sehr groß werden kann. In der Praxis wird daher oft die maximal wählbare Auflösung der Darstellung eingeschränkt, so dass insbesondere auch eine oft gewünschte interaktive Rotation des volumetrischen Objektes zur Erfassung der wesentlichen Eigenschaften noch gut durchführbar ist. Eine Einsicht in das Volumeninnere wird bei diesem Ansatz durch die Einführung von Schattierungsstufen der einzelnen Seitenrechtecke im Fall von verwendeten Würfeln erreicht. Die Transparenz wird dabei in Abhängigkeit des jeweiligen Blickwinkels des Betrachters über die räumliche Entfernung der relevanten Rechtecke zum Betrachtungspunkt erzielt [Nielson1993].

Die Anwendung von Schnittmethoden basiert auch auf einer Farbkodierung der abhängigen Daten. Ein Datenwürfel, der als Repräsentant für den Raum der darzustellenden Datenpunkte betrachtet werden kann, wird durch Achsen parallele oder Nutzer definierte Schnitte beschrieben. Die daraus resultierenden Schnittebenen werden gleichzeitig entsprechend der zugehörigen Datenwerte farbkodiert dargestellt und füllen somit das zu visualisierende Volumen aus [Nielson1993]. Die Schnittmethode ist schon lange bekannt und fehlt in der Regel in keiner Graphiksoftware, da sie intuitiv leicht zu verstehen ist und der Nutzer schnell Erfolge bei Visualisierungsprojekten erzielen kann. Dieses Verfahren weist eine hohe Zuverlässigkeit auf, weil das eigentlich dreidimensionale Problem auf eine zweidimensionale Aufgabe reduziert wird. Die Berechnungen können beschleunigt werden, wenn die Eingangsdaten zuvor auf ein regelmäßiges, geradliniges Gitter abgebildet wurden. Dann können die jeweiligen Schnittebenen vorteilhaft senkrecht zu den Hauptachsen durch den darzustellenden Raum bewegt werden [Brodie2001].

Konturdarstellungen sind insbesondere für bivariate Daten weit verbreitet. Beispielsweise können Gebietsmodelle auf der Basis von geographischen Höhenangaben mit Hilfe von Konturabbildungen visualisiert werden. Dabei erfolgt in der Regel eine Extraktion von so genannten Isoflächen, so dass auch eine schichtweise Darstellung von trivariaten Daten möglich ist. Liegen die Eingangsdaten bereits auf einem regelmäßigen Gitter vor, wie es durch eine entsprechende Vorgabe von geographischen Messpunkten erfolgen kann, wird oft erfolgreich eine Berechnung von Isoflächen mit Hilfe des „marching cubes“-Algorithmus durchgeführt. Diese Vorschrift zur Bestimmung von skalaren Attributwerten an nicht vorliegenden Datenpunkten ist weit verbreitet. Allerdings ist eine Implementierung nicht trivial, da eine Unterscheidung zwischen geometrischen und topologischen Eigenschaften anhand von Schwellwerten erfolgt, wobei dessen Festlegung eine genaue Kenntnis der gegebenen Datenmenge erfordert. Dies ist in der Praxis jedoch oftmals sehr schwierig oder auch nicht hinreichend genau möglich, so dass mit Hilfe von Klassifizierungen Vereinfachungen vorgenommen werden. Infolge des auf Schwellwerten basierenden Ansatzes sind die Klassifizierungen binär, so dass aufgrund des damit verbundenen Informationsverlustes die ermittelten Isoflächen nicht immer genau sind. In der Praxis wird oft versucht, diese Problematik durch so genannte „subdivision“ zu umgehen. Dabei werden die abzubilden-

den Voxel solange unterteilt, bis die daraus resultierenden Abweichungen unterhalb eines in der Regel Nutzer definierten Wertes liegen. Sind bei gegebenen Eingangsdaten jedoch bei Erreichen des vorgegebenen Wertes immer noch Mehrdeutigkeiten vorhanden, können die ermittelten Konturen Löcher aufweisen. Mit dieser Prozedur ist ein hoher Rechenaufwand verbunden, da die Berechnungen für jeden Schwellwert iterativ wiederholt werden müssen. Die vorstehend aufgeführten Nachteile des „marching cubes“-Algorithmus können zum Teil umgangen werden, wenn anstelle eines Würfels ein Tetraeder als Basiselement verwendet wird [Nielson1993, Hoppe1996, Brodlie2001, Schumann2004].

Abschließend wird das „volume rendering“ als weitere Methode der Volumenvisualisierung skizziert. Als „rendering“ wird dabei auch eine Ausgabe von Isoflächen oder eine direkte Darstellung von Volumendaten in Form einer Graphik bezeichnet. Für ausführliche Informationen zu diesem umfangreichen Themenkomplex wird auf die entsprechende Fachliteratur, wie z. B. [Nielson1993, Brodlie2001], verwiesen. Durch Anwendung dieser Technik wird ein Bild in der Regel direkt aus den Volumendaten ohne eine geometrische Zwischenstruktur erzeugt. Dies kann mit Bildraum basierten Verfahren erfolgen, wobei ein Strahl durch einen Datenwürfel geschossen wird und anhand der dabei getroffenen Volumenelemente eine Auswertung der Farbverteilung erfolgt. Anschließend werden die ermittelten Farbwerte einzelnen Pixel zugewiesen. Aber auch Objektraum basierte Praktiken können angewandt werden, die einzelne Volumenelemente auf eine Bildebene projizieren. Gemein haben die verschiedenen Methoden des „volume rendering“ jedoch, dass sie einen sehr hohen Rechenaufwand erfordern und somit eine Echtzeitdarstellung nicht ermöglichen. Darüber hinaus sind gängige Graphikkarten aufgrund fehlender Hardwareunterstützung für das „volume rendering“ mit Bildraum und Objektraum basierenden Ansätzen nicht nutzbar. Es wurden daher Textur basierte Techniken eingeführt, die den dreidimensionalen Texturspeicher aktueller Graphikausgabegeräte nutzen. In Bild 5.9 ist abschließend ein integriertes Referenzmodell des gesamten Vorgangs der wissenschaftlichen Visualisierung angegeben.

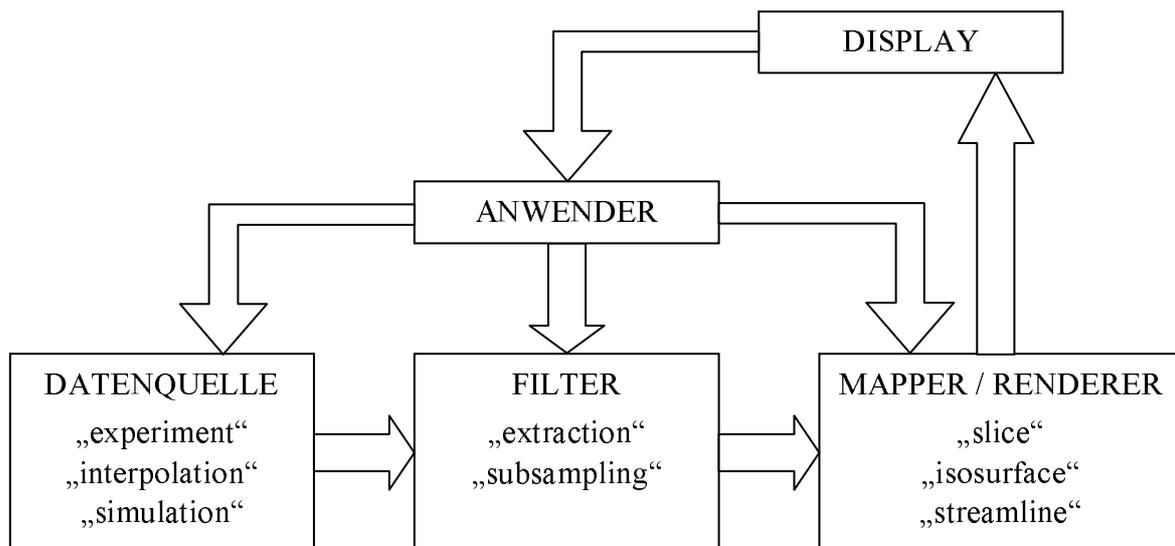


Bild 5.9: Referenzmodell für die wissenschaftliche Visualisierung [Theisel2001]

5.2 Datenstruktur und Arbeitsweise des Modellierungsverfahrens

Im folgenden Abschnitt wird die Datenstruktur für das angewandte Modellierungsverfahren sowie dessen Arbeitsweise beschrieben. Dazu ist zunächst in Tabelle 5.3 eine Übersicht angegeben, die die Zuordnung der Raumkoordinaten und skalaren Attribute zueinander zusammenfasst.

Tabelle 5.3: Zuordnung zwischen Raumkoordinaten und den Zustand von VPE-Isolierungen charakterisierenden Kennwerten

Koordinaten			Attribut	Messverfahren
x_i	y_j	z_k	G_{ijk}	
ϑ_a	t_a	E_a	E_{RF}	elektrische Restfestigkeit
ϑ_a	t_a	E_a	τ_i	isotherme Depolarisation
ϑ_a	t_a	E_a	$T_{2, \text{eff}}$	NMR-Relaxation
ϑ_a	t_a	E_a	W_A	thermisch stimulierte Depolarisation

Die Anordnung der zu modellierenden Raumdaten ist unabhängig von der Art des Attributs. Es sind lediglich reelle positive Zahlen erforderlich, was vor dem praktischen Hintergrund der Anwendung dieses Modellierungsverfahrens jedoch keine Einschränkung darstellt, da die aus den diagnostischen Untersuchungen gewonnenen Kennwerte positive reelle Zahlen sind. Die Koordinaten werden durch die während der Alterungsversuche eingepprägten Beanspruchungsgrößen E_a , ϑ_a und t_a gebildet.

Als Attributwerte werden die mit Hilfe der durchgeführten diagnostischen Untersuchungen ermittelten Kennwerte verwendet. Somit können der gewählten Datenstruktur die Eigenschaften eines mehrdimensionalen Arrays zugeordnet werden. Eine entsprechende Schichtenstruktur zur bildhaften Vorstellung ist schematisch in Bild 5.10 dargestellt. Durch den Parameter t_a werden dabei jeweils zweidimensionale Ebenen voneinander getrennt, in denen der zugehörige Attributwert durch die verbleibenden Raumkoordinaten E_a und ϑ_a positioniert wird. Diese Art der Datenstruktur hat darüber hinaus im Hinblick auf eine effiziente Datenspeicherung den Vorteil, dass eine physikalische Abspeicherung eines Datensatzes als Matrix nicht notwendig ist. Jedes Element einer bei Volumendatensätzen oft verwendeten Matrixform kann somit schnell aus der Arraystruktur gewonnen werden, und die Speicherplatzanforderungen bleiben daher moderat.

Um die vorstehend beschriebene Datenstruktur zu erhalten, sind zuvor einige Arbeitsschritte erforderlich, die nachfolgend beschrieben werden. Zunächst sind infolge der aus den experimentellen Untersuchungen nur in spärlichem Umfang vorliegenden Eingangsdaten weitere Stützstellen für die im ersten Schritt des Modellierungsverfahrens durchzuführende multivariate Approximation der Randflächen zu bestimmen.

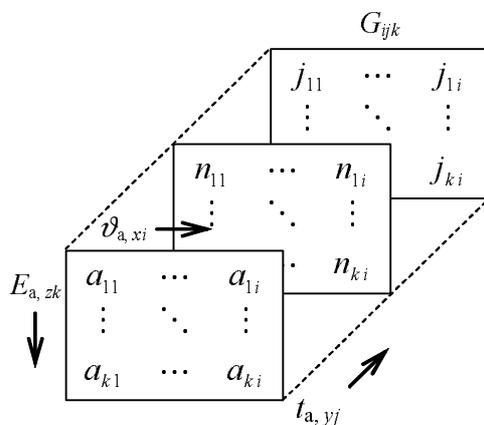


Bild 5.10: Schematische räumliche Anordnung der verwendeten Datenstruktur

Dies wird durch die Umsetzung von Spline- bzw. Hermite-Interpolationen der experimentellen Werte in Verbindung mit dem Ansatz von *Montefusco* mit dem Ziel erreicht, Oberflächen durch spärlich verteilte Datenpunkte möglichst glatt und genau numerisch zu bestimmen (vgl. Kapitel 5.1.3.2). Ein Nutzereingriff ist an dieser Stelle nur bei der Festlegung von Hilfspunkten im Rahmen der Umsetzung des *Montefusco*-Verfahrens erforder-

lich. Die Variationsmöglichkeit dabei ist aufgrund der Berücksichtigung der Richtungsabhängigkeit der Stützstellen bezüglich der Gitterpunkte jedoch nur gering. Am Beispiel von Ergebnissen aus Restfestigkeitsuntersuchungen nach definierten Alterungsbeanspruchungen von VPE-isolierten Kabeln wurden die Stützpunkte für $t_a = 5$ a und $t_a = 10$ a derart ermittelt.

Aus den somit aus Experimental- und Interpolationspunkten bestehenden Eingangsdatensätzen wurde anschließend mit Hilfe von RBF eine multivariate Approximation zur Ermittlung der Randfläche des entsprechenden darunter liegenden Volumens durchgeführt. Dabei wurden mögliche Nutzereingriffe auf ihre Einflüsse hinsichtlich der Interpolationsgenauigkeit genauer untersucht. Die dabei ermittelten Resultate werden in den folgenden Abschnitten beschrieben.

5.2.1 Einfluss frei wählbarer Gleichungsparameter auf die Genauigkeit von multivariaten Approximationen mit RBF

Da eingangs sowohl Spline- als auch Hermite-Interpolationen zur Erzeugung weiterer Stützstellen in der zu ermittelnden Randfläche angewandt wurden, wird in diesem Unterkapitel der Einfluss des Interpolationsverfahrens auf den damit erzielten Interpolationsfehler genauer untersucht.

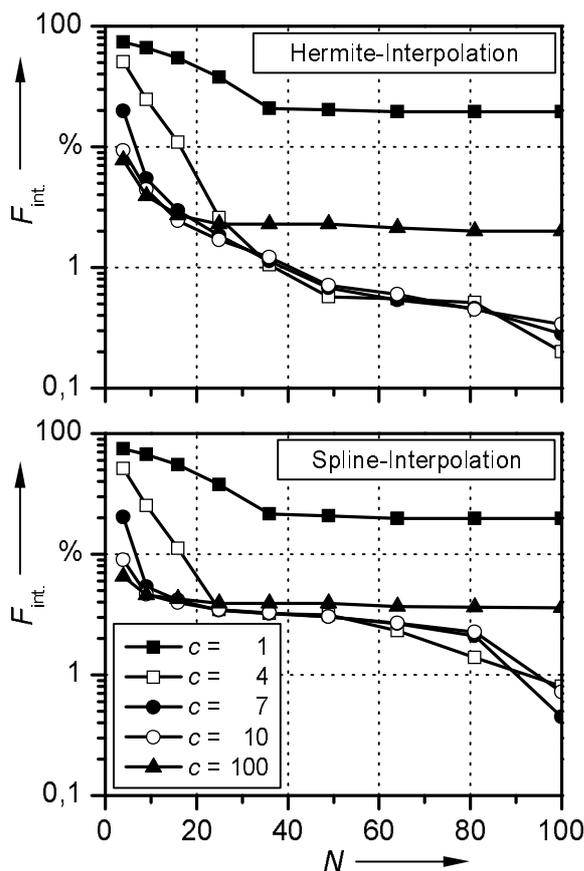


Bild 5.11: Vergleich der Interpolationsfehler F_{int} von Spline - und Hermite-Interpolationen für verschiedene „shape parameter“ c in Abhängigkeit von der Anzahl N der verwendeten RBF (RBF-Typ = Gaussfunktion)

Dabei ist anzumerken, dass aufgrund der geringeren Oszillationsneigung von Hermite-Interpolationen insbesondere bei der vorliegenden spärlichen Datenstruktur dieser Ansatz zur Ermittlung zusätzlicher Approximationsstellen verwendet wurde (vgl. Kapitel 5.1.3.2). In Bild 5.11 sind dazu unter Anwendung von Gleichung 5.21 die jeweilige Interpolationsgenauigkeit von Daten aus elektrischen Restfestigkeitsuntersuchungen bei Verwendung von Spline- und Hermite-Interpolationen für verschiedene Kombinationen der Anzahl N der verwendeten RBF und dem gewählten „shape parameter“ c zusammengefasst. Der Darstellung kann entnommen werden, dass bei beiden Verfahren etwa ab einem untersuchten „shape parameter“ $c = 7$ keine weitere Reduzierung des Interpolationsfehlers F_{int} festzustellen ist. Lediglich über eine Erhöhung der Anzahl N der verwendeten RBF kann noch eine zusätzliche Steigerung der Interpolationsgenauigkeit erreicht werden. Dabei wirkt sich jedoch nachteilig aus, dass mit zunehmender Anzahl N auch der Rechenaufwand und damit die benötigte Rechendauer deutlich ansteigt. Daher wurde im Weiteren mit der Kombination $c = 7$ und $N = 50$ gearbeitet. Insgesamt kann anhand der in Bild 5.11 zusammengefassten Ergebnisse festgestellt werden, dass bei Verwendung von Hermite-

Interpolationen zur Bestimmung zusätzlicher Stützstellen ein Interpolationsfehler von weniger als 1 % erreicht werden kann.

Die in Bild 5.11 dargestellten Resultate wurden unter Verwendung einer Gaussfunktion als radiale Basisfunktion ermittelt. Um zu prüfen, inwiefern diese Auswahl einen Einfluss auf das Interpolationsergebnis hat, wurden mit den festgelegten Werten für c und N verschiedene RBF im Hinblick auf die Genauigkeit getestet. Die Ergebnisse dieser Untersuchung sind in Bild 5.12 zusammengefasst.

Die einzelnen verschiedenen RBF zeigen untereinander nur geringe Unterschiede hinsichtlich des nach Gleichung 5.21 ermittelten Interpolationsfehlers. Weiterhin veranschaulicht Bild 5.12 auch eine höhere Interpolationsgenauigkeit bei Verwendung von Hermite-Interpolationen zur

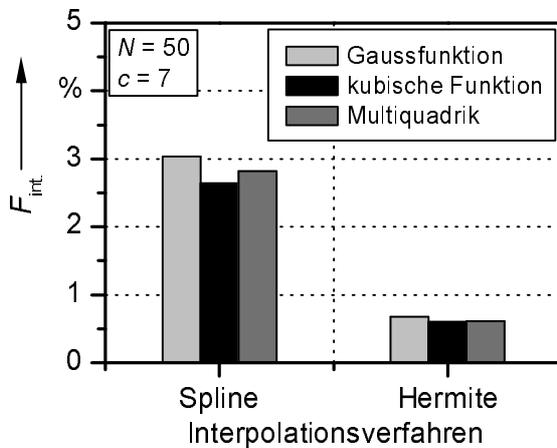


Bild 5.12: Interpolationsfehler F_{int} von verschiedenen RBF für Spline - und Hermite-Interpolationen

Erzeugung zusätzlicher Stützpunkte. Insgesamt ist der Unterschied zwischen den verschiedenen radialen Basisfunktionen bei Spline-Interpolationen moderat größer als bei Hermite-Interpolationen.

In der Literatur wird darauf hingewiesen, dass die verschiedenen RBF-Typen unterschiedlich gut für bestimmte Strukturen der Eingangsdaten geeignet sind [Lodha1997, Buhmann2003]. Bei der am Beispiel von Ergebnissen aus elektrischen Restfestigkeitsuntersuchungen an VPE-isolierten Energiekabeln vorliegenden Komposition der Eingangswerte erscheint dieser Effekt bei ausschließlicher Betrachtung der Approximationsgüte jedoch nicht so gravierend vorhanden zu sein. Trotzdem wurde aufgrund der Tatsache, dass bei der praktischen Anwendung von Approximationsmustern oftmals ein Kompromiss zwischen der Approximationsgüte und der Glattheit erforderlich ist [Iske1994, Wendland1996, Schütze1998], auch ein Vergleich hinsichtlich der mit verschiedenen RBF-Typen erzielten Glattheit der ermittelten Flächen durchgeführt.

5.2.2 Einfluss des RBF-Typs auf die Glattheit von Flächenformulierungen spärlich verteilter Daten

Im Rahmen dieses Unterkapitels werden die Ergebnisse zum Einfluss des RBF-Typs auf die Glattheit der jeweils bestimmten Flächenformulierungen vorgestellt. Es wurden dabei die im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Erkenntnisse bei der Vorgabe der wählbaren Gleichungsparameter berücksichtigt.

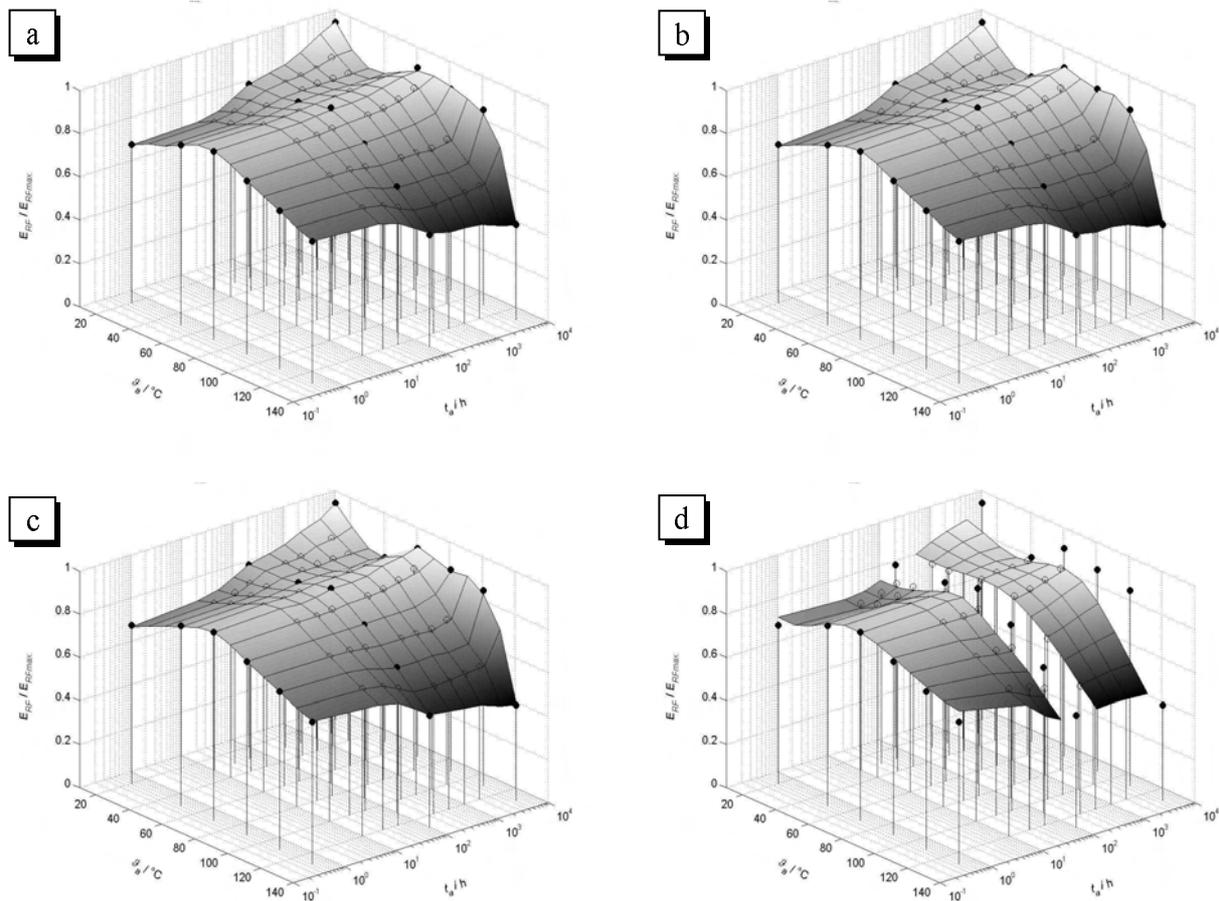


Bild 5.13: Für verschiedene RBF-Typen mit $c = 7$ und $N = 50$ ermittelte Oberflächen (● = experimentelle Stützstellen; ○ = mit Hermite-Interpolationen zusätzlich bestimmte Stützstellen)

- a) $F_{\text{int.}} = 0,00595$ – RBF: kubische Funktion
- b) $F_{\text{int.}} = 0,00638$ – RBF: Gaussfunktion
- c) $F_{\text{int.}} = 0,00622$ – RBF: Multiquadrik
- d) $F_{\text{int.}} = \text{NaN}$ – RBF: „thin plate spline“

In Bild 5.13 sind die mit den RBF-Typen kubische Funktion, Gaussfunktion, Multiquadrik und „thin plate spline“ bestimmten Oberflächen auf der Basis von Eingangsdaten aus elektrischen Restfestigkeitsuntersuchungen zusammengefasst. Es ist dabei zunächst zu erkennen, dass bei Verwendung des RBF-Typs „thin plate spline“ eine Oberfläche mit hoher Glattheit und entsprechend geringer Approximationsgüte erzeugt wird. Aufgrund der spärlichen Struktur der Eingangsdaten konnte sogar ein Teil der Daten nicht approximiert werden. Dies ist anhand des entsprechend fehlenden Bereiches in der berechneten Oberfläche zu erkennen. Der RBF-Typ „thin

plate spline“ wurde in der Vergangenheit bereits vielfach zur multivariaten Flächenapproximation eingesetzt, wenn besonders hohe Anforderungen an die Glattheit der Flächen zu erfüllen waren und nur eine geringe Anzahl an gleichmäßig verteilten Punkten vorlagen. Im Allgemeinen sind die Reproduktionsqualität von multivariaten Approximationen sowie die numerische Stabilität bei der Lösung linearer Gleichungssysteme eng mit der vorliegenden Datendichte und der Glattheit verbunden. Eine übermäßige Anforderung an die Glattheit wirkt sich dabei negativ auf die numerische Stabilität aus [Schaback1995].

Bei der Verwendung einer Multiquadrik oder einer kubischen Funktion als RBF kann den entsprechenden Darstellungen in Bild 5.13 entnommen werden, dass eine Abnahme hinsichtlich der Glattheit mit einer Steigerung der Approximationsgüte verbunden ist. Durch einen visuellen Vergleich ist jedoch auch ersichtlich, dass diese beiden RBF-Typen speziell die an den Rändern der Datensätze befindlichen Punkte mit entsprechend hoher Genauigkeit interpolieren und somit dort zu einer deutlichen geringeren Glattheit führen. Damit wird erhärtet, dass der bereits erwähnte Kompromiss zwischen Approximationsgüte und Glattheit für eine optimale multivariate Flächenapproximation zu finden ist. Im Fall der hier vorliegenden Eingangsdatenkomposition kann anhand der bisher gewonnenen Erkenntnisse festgestellt werden, dass mit einer Gaussfunktion als RBF-Typ ein guter Ausgleich zwischen diesen gegenläufigen Kriterien hergestellt wird.

Auf einen formalen Vergleich mit Hilfe von numerischen Glattheitskriterien, wie sie beispielsweise in [Schütze1998] durch Minimierungen von Krümmungsenergien angegeben sind, wird an dieser Stelle verzichtet, da die in der Literatur beschriebenen Tendenzen und Hilfen zur Auswahl geeigneter RBF für bestimmte Strukturen an Eingangsdaten bereits auf ihre Anwendbarkeit hin verglichen wurden. Weiterhin stellt eine intuitive Erfassung von Flächen- und Volumenabbildungen ein wesentliches Merkmal der wissenschaftlichen Visualisierung dar, so dass auch ein rein visueller Vergleich der Glattheit unterschiedlicher Flächenformulierungen anwendbar ist.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen im Umfeld des entwickelten Modellierungsverfahrens von Lebensdauervolumina geben eine zum gegenwärtigen Stand der Ausarbeitungen gültige Kenntnisstufe wieder. Es wurde dabei aufgrund der Komplexität dieses Themengebietes an dieser Stelle eine Einschränkung hinsichtlich der weiteren Betrachtungsansätze vorgenommen, da diese den Umfang der Arbeit deutlich überschritten hätten. Es ist daher denkbar, dass auch der Parameter Glattheit der ermittelten Flächen bei weiterer analytischer Analyse der für das vorgestellte Modellierungsverfahren genutzten Theorien und deren Techniken genauer untersucht werden kann.

5.2.3 Bestimmung von Volumendarstellungen auf der Basis von Flächenformulierungen

Der Übergang von einer Flächenformulierung in eine Wert entsprechende Volumendarstellung erfordert mehrere analytische Zwischenschritte, die im Folgenden dargelegt werden sollen. Es können dafür einige der bereits in den vorangegangenen Abschnitten beschriebenen Methoden angewandt werden, wobei gegebenenfalls spezielle Anforderungen der jeweils verwendeten Graphiksoftware zu berücksichtigen sind. Das vorgestellte Modellierungsverfahren wurde in der Softwareumgebung MATLAB[®] der Firma *The MathWorks Inc.* umgesetzt, die als weit verbreiteter Standard auf dem Gebiet von numerischen Berechnungen gilt und zur Datenvisualisierung verwendet werden kann. Darüber hinaus erfordert die graphische Darstellung der berechneten Datensätze keine besondere Speicherbehandlung, die später jedoch bei Bedarf für Berechnungs-

optimierungen leicht zusätzlich implementiert werden kann. Eine Visualisierung kann somit im Gegensatz zu OpenGL oder VRML auf einem handelsüblichen Arbeitsplatzrechner ausgeführt werden.

OpenGL ist eine hardwareunabhängige Schnittstelle zwischen einem Anwenderprogramm und einer Graphiksoftware zum Modellieren und Projizieren von dreidimensionalen Objekten. In der Regel wird in dieser Visualisierungsumgebung eine Client/Server-Struktur ausgenutzt, wobei der Client-Rechner nicht identisch mit dem Server-Rechner ist. Daher ist zur Übertragung zwischen Client und Server immer ein Netzwerk notwendig. Aufgrund der dabei verwendeten Protokollstruktur können die Rechnerarchitekturen von Client und Server auch verschieden sein. VRML steht für „virtual reality modeling language“ und wird als Datenaustausch in einer für Menschen vertrauten Art und Weise zur Beschreibung von dreidimensionalen Szenen mit multimedialen Komponenten und Animation verstanden. Diese Methode nutzt auch eine Client/Server-Struktur, wobei komplette Objekte und Szenen in die für die Visualisierung verantwortliche Software importiert werden.

Nachdem in einem ersten Schritt des Modellierungsverfahren zur Visualisierung von Lebensdauervolumina eine Randflächen- bzw. Oberflächenbestimmung hoher Genauigkeit unter Verwendung von RBF durchgeführt wurde (s. Kapitel 5.2.1 und 5.2.2), erfolgt in einer zweiten Prozedur die Ermittlung des unterhalb der Oberfläche befindlichen Volumens. Dazu wird zunächst ein den darzustellenden dreidimensionalen Datensatz umfassendes gleichmäßiges Gitter erzeugt. Das geschieht durch eine Nutzereingabe, mit der die Auflösung der Volumendarstellung gesteuert und damit auch die Berechnungsdauer variiert werden kann. Danach wird eine *Delaunay*-Triangulation durchgeführt, die den Eingangsdatensatz auf dem in diesem Fall vorteilhaften gleichmäßigen Gitternetz linear interpoliert. Eine Berücksichtigung von Erweiterungen zur Interpolation von außerhalb des Gitternetzes liegenden Datenpunkten ist nicht erforderlich, da das durch die Nutzervorgabe vorgegebene Gitter nur maximal die Randwerte des Datensatzes aus der vorangegangenen Flächenapproximation umfasst.

Im Laufe der Anwendung des Modellierungsverfahrens hat sich gezeigt, dass bei zu geringer Gitterauflösung besonders in den Randbereichen der Volumendarstellung Unstetigkeiten auftreten können. So kann es bei der Berechnung der Volumendaten vorkommen, dass bei der Durchführung der *Delaunay*-Triangulation einzelne Datenpunkte nicht korrekt bestimmt werden können. Das ist darauf zurückzuführen, dass die möglichen Werte auf oder in unmittelbarer Nähe der konvexen Hülle liegen und infolge von Rundungseffekten oder nicht vorhandenen Daten bei zu geringer Auflösung nicht mehr eindeutig bestimmbar sind. Diese Erscheinung kann speziell dann beobachtet werden, wenn die durch den Nutzer festgelegte Gitterauflösung sehr gering ist. In Bild 5.14 kann dieser Effekt für alle Abbildungen beobachtet werden. Dort findet sich eine Zusammenfassung von unterschiedlichen Volumendarstellungen auf der Basis von Eingangsdaten aus elektrischen Restfestigkeitsuntersuchungen. Die berechneten elektrischen Restfestigkeitswerte sind farblich skaliert zwischen 30 kV/mm und 90 kV/mm dargestellt, und die aus den Versuchen vorliegenden Daten sind der Graphik in Form von schwarzen Punkten zu entnehmen.

Bei der Berechnung der Volumendaten wurde die Gitterauflösung in Bild 5.14 zwischen jeweils 10 und 100 linear verteilten Werten im vorliegenden Datenbereich variiert. Es ist zu erkennen, dass selbst bei einer vorgegebenen Auflösung von 100 linear verteilten Werten innerhalb des zu

modellierenden Bereiches der Abstand auf der t_a -Achse zwischen dem Startwert für die *Delau-**nay*-Triangulation und dem nächsten Datenpunkt ca. 50 h beträgt. Damit können auch nur die Datenpunkte abgebildet werden, die auf der t_a -Achse bei etwa 50 h liegen, da sich die auf der t_a -Achse bei 0,5 h befindenden experimentellen Werte bereits auf der konvexen Hülle befinden und somit nicht korrekt trianguliert werden können. Für den Fall, dass eine Gitterauflösung von 50 oder weniger linear verteilten Punkten im darzustellenden t_a -Bereiche vorgegeben wurde, liegen zwischen zwei experimentellen Stützpunkten keine Gitterwerte, die zur Triangulierung genutzt werden können. Daher kommt besonders einer geeigneten Nutzervorgabe für die Gitterauflösung entlang der t_a -Achse eine gewisse Bedeutung zu.

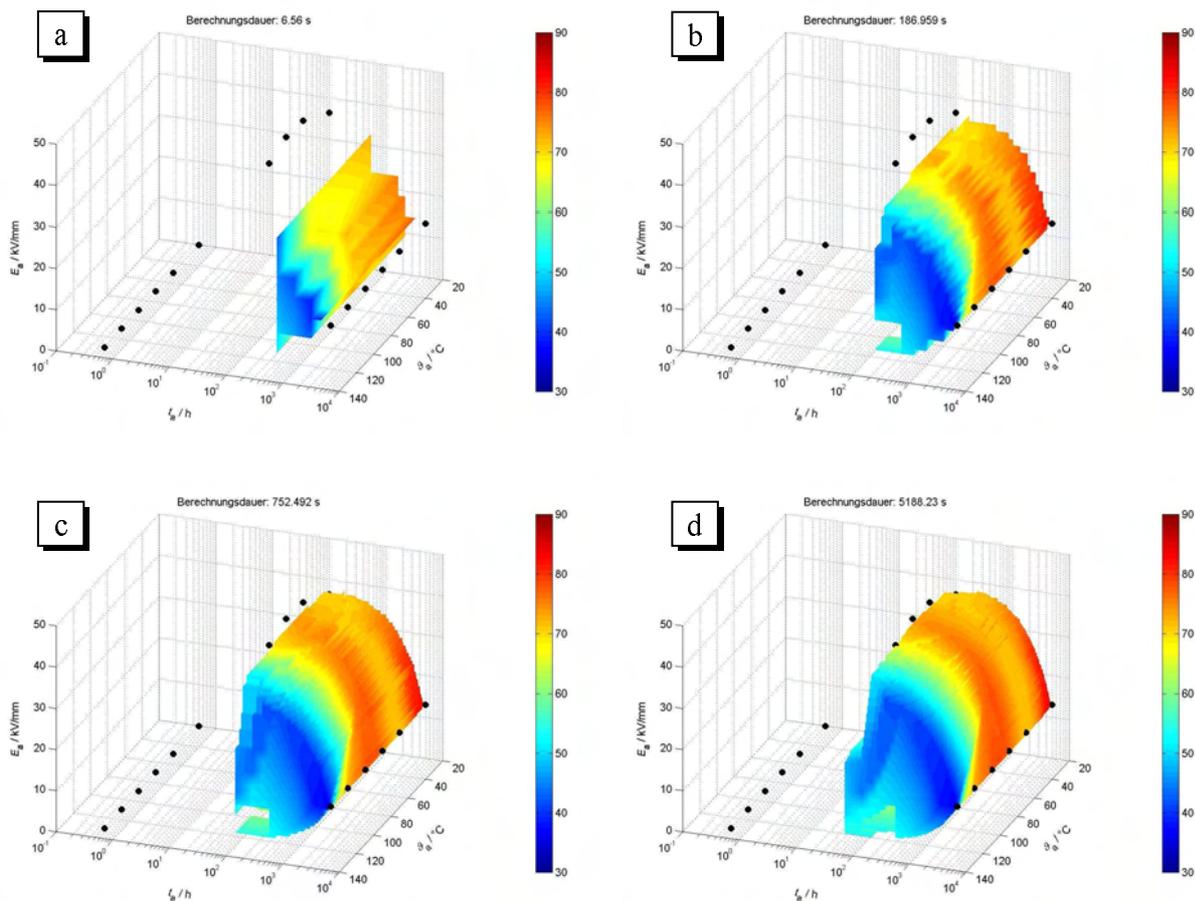


Bild 5.14: Volumendarstellungen mit verschiedenen Gitterauflösungen aus dem Bereich $E_a = 0 \text{ kV/mm} \dots 42 \text{ kV/mm}$, $v_a = 20 \text{ °C} \dots 130 \text{ °C}$ und $t_a = 0,5 \text{ h} \dots 5000 \text{ h}$

(● = experimentelle Stützstellen) mit jeweils

- 10 linear verteilten Werten
- 30 linear verteilten Werten
- 50 linear verteilten Werten
- 100 linear verteilten Werten

In Bezug auf die Darstellung der mit den jeweils vorgegebenen Gitterauflösungen berechneten Volumendaten wurden die mehrdimensionalen Ergebnisarrays mittels „slicing“-Technik visualisiert. Dabei erfolgte die Abbildung der einzelnen Schichten auf dem gewählten Gitternetz jeweils dreidimensional. Das Vorgehen wird besonders bei Betrachtung von Bild 5.14 a) deutlich, wo einzelne Sichten aufgrund der geringen Gitterauflösung noch gut erkennbar sind. Hinsichtlich der Bedeutung von geeigneten Vorgaben für die Gitterwerte speziell entlang der

t_a -Achse wurden im Rahmen der durchgeführten Untersuchungen verschiedene Vorgaben miteinander verglichen. Exemplarisch dafür zeigt Bild 5.15 eine Volumendarstellung mit unterschiedlichen Gitterauflösungen in den jeweiligen Dimensionen, in der die berechneten elektrischen Restfestigkeiten farblich zwischen 30 kV/mm und 90 kV/mm skaliert dargestellt sind. Aufgrund der im Vergleich zu den in Bild 5.14 dargestellten Ergebnissen hohen Auflösung für die Zeitwerte ergibt sich eine kompakte Volumendarstellung mit einem Abstand von etwa 5 h zwischen zwei benachbarten Gitterpunkten. In Abhängigkeit von der jeweils verwendeten handelsüblichen Hardwareumgebung sind selbst bei vergleichsweise hoher Gitterauflösung Rechenzeiten von maximal 60 Minuten erreichbar (s. Bild 5.16).

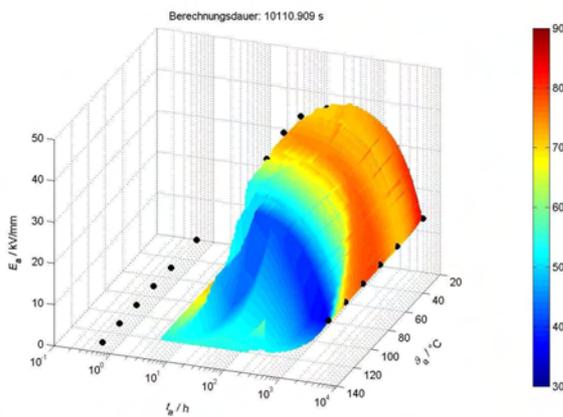


Bild 5.15: Volumendarstellung mit 20, 1000 und 105 linear verteilten Werten aus dem Bereich $E_a = 0$ kV/mm...42 kV/mm, $\vartheta_a = 20$ °C...130 °C, $t_a = 0,5$ h...5000 h (● = experimentelle Stützstellen)

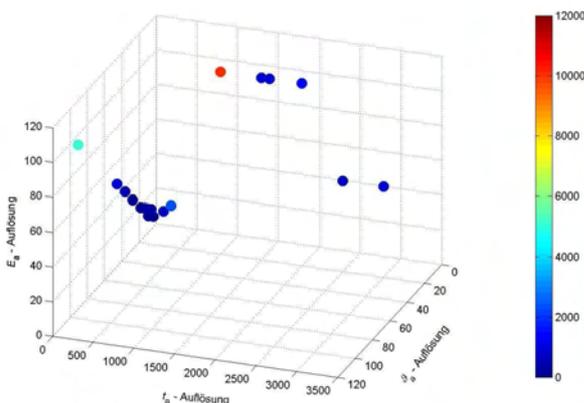


Bild 5.16: In verschiedenen Hardwareumgebungen benötigte Berechnungszeiten in Abhängigkeit von der Gitterauflösung mit linear verteilten Werten entlang der drei Dimensionen (blau = 0 s; rot = 12000 s)

Die in diesem Abschnitt beschriebene Vorgehensweise zur Modellierung von Volumendaten auf der Basis von Flächenformulierungen mit spärlich vorliegenden Eingangsdaten aus elektrischen Restfestigkeitsuntersuchungen ist, wie bereits in Kapitel 5.2 beschrieben, auf prinzipiell jeden anderen Attributwert übertragbar. Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten experimentellen Untersuchungen zur Zustandsbewertung von VPE-isolierten Energiekabeln nach definierten Altersbeanspruchungen zeigte sich dafür die Eignung der Kennwerte τ_i aus Versuchen zum isothermen Depolarisationsverhalten und $T_{2, \text{eff}}$ aus Untersuchungen zur NMR-Relaxation von Polymeren. Diese Kenndaten können im Gegensatz zu elektrischen Restfestigkeitswerten zerstörungsfrei gewonnen werden und eignen sich daher zu einer Zustandsbewertung nach im Rahmen eines „asset management“-Verfahrens festgelegten Zeitintervallen.

An dieser Stelle wurde bei der prinzipiellen Beschreibung der Arbeitsweise des entwickelten Modellierungsverfahrens auf die Darstellung von Ergebnissen mit τ_i - bzw. $T_{2, \text{eff}}$ -Daten verzichtet, da das Verfahren nicht Werte spezifisch ist. Darüber hinaus lag aus den Versuchen zum elektrischen Restfestigkeitsverhalten die vergleichsweise größte Datenbandbreite der Untersuchungsparameter vor, so dass ein realistischer Vergleich zwischen den mit Hilfe des Modellierungsverfahrens berechneten Werten und realen Versuchsdaten vorgenommen werden konnte.

5.3 Anwendung des Modellierungsverfahrens am Beispiel von Versuchsdaten aus elektrischen Restfestigkeitsuntersuchungen

Im Rahmen dieses Abschnitts erfolgt ein Vergleich zwischen experimentell ermittelten elektrischen Restfestigkeitsdaten und mit Hilfe des zuvor beschriebenen Modellierungsverfahrens berechneten Werten. Die für die Korrelation verwendeten Versuchsdaten wurden bei der Modellierung der entsprechenden Volumendarstellung nicht mit berücksichtigt. Aufgrund der vorhandenen Struktur der Alterungsparameter, mit denen die VPE-isolierten Modellkabel beansprucht wurden, werden zwei verschiedene Zeitbereiche gegenübergestellt, die jeweils unterschiedliche Kombinationen zwischen Versuchsdaten und zusätzlich interpolierten Werten aufweisen (vgl. Kapitel 5.2).

5.3.1 Experimentelle Daten bis $t_a \leq 5000$ h mit zusätzlich interpolierten Werten bis $t_a \leq 5000$ h

In Bild 5.17 ist ein Vergleich zwischen experimentellen Versuchsergebnissen und mit Hilfe des entwickelten Modellierungsverfahrens mit einer Datenbasis bis $t_a \leq 5000$ h berechneten Resultaten dargestellt. Die einzelnen Probenkollektive wurden dabei für 2000 h mit 13,1 kV/mm sowie

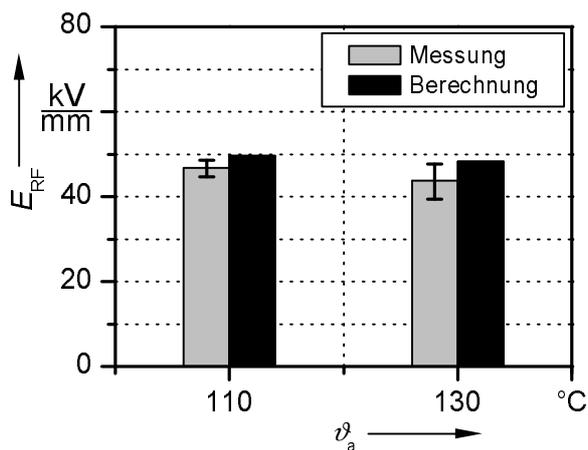


Bild 5.17: Vergleich von experimentell ermittelten elektrischen Restfestigkeiten E_{RF} und berechneten Werten für Probenkollektive mit $t_a = 2000$ h und $E_a = 13,1$ kV/mm in Abhängigkeit der Alterungstemperatur ϑ_a

Temperaturen von 110 °C und 130 °C beansprucht. Bei den Experimentaldaten sind die entsprechenden Weibull-Nennwerte einschließlich unterer und oberer 95%-Vertrauensgrenze abgebildet, und die Modellierungsergebnisse zeigen den zu den drei Alterungsparametern zugehörigen Wert. Die gemessenen und die berechneten Werte unterscheiden sich nur geringfügig voneinander, wobei die modellierten Daten tendenziell etwas größer sind als die Experimentalwerte. Ein Einfluss der Alterungstemperatur auf diesen Abweichungstrend ist nicht erkennbar. Weiterhin zeigt sich auch der prinzipiell abnehmende Trend der elektrischen Restfestigkeit mit zunehmender Alterungstemperatur bei thermischer Beanspruchung im Bereich der Kristallitschmelztemperatur.

Die an dem Tripel $E_a = 13,1$ kV/mm, $\vartheta_a = 110^\circ\text{C}$ bzw. 130°C und $t_a = 2000$ h berechnete elektrische Restfestigkeit ist nicht in den Eingangsdaten der Modellierung enthalten. Somit kann die Annahme von zukünftig zu erwartenden Restfestigkeiten durch entsprechende Anwendung der vorgeschlagenen Modellierungstechnik auf ihre Eignung hin überprüft werden. Die entsprechend approximierte Oberfläche wurde mit einem „shape parameter“ $c = 7$, einer Gleichungsanzahl $N = 50$ sowie mit einer Gaussfunktion als RBF-Typ ermittelt (s. Kapitel 5.2.1 und 5.2.2).

Die anhand der oben beschriebenen Datenbasis modellierte Volumendarstellung ist in Bild 5.18 dargestellt. Das abgebildete Volumen wurde mit einer Gitterauflösung von 20 linear verteilten Werten entlang der ϑ_a -Achse, 2000 linear verteilten Werten entlang der t_a -Achse und 105 linear

verteilten Werten in E_a -Richtung innerhalb des untersuchten Wertebereiches bestimmt, und die berechnete elektrische Restfestigkeit ist farblich skaliert zwischen 40 kV/mm und 85 kV/mm dargestellt.

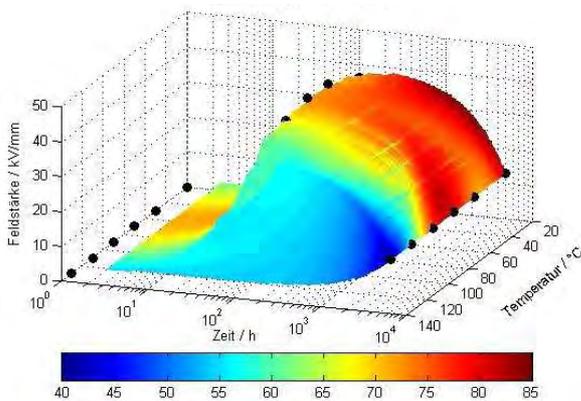


Bild 5.18: Volumendarstellung auf der Basis von Eingangsdaten mit Alterungszeiten $t_a \leq 5000\text{h}$ (\bullet = Stützstellen; Farbbalken = berechnete elektrische Restfestigkeit E_{RF})

Änderung des bisher beobachteten Trendverhaltens zwischen berechneten und gemessenen Daten feststellen lässt. Dazu sind im nachfolgenden Unterkapitel exemplarisch die entsprechenden Ergebnisse zusammengefasst.

5.3.2 Experimentelle Daten bis $t_a \leq 8760\text{ h}$ mit zusätzlich interpolierten Werten bis $t_a \leq 10\text{ a}$

Nachstehend werden die Modellierungsergebnisse beschrieben, die auf der Basis von Versuchsdaten mit $t_a \leq 8760\text{ h}$ sowie zusätzlich interpolierten Werten bis $t_a \leq 10\text{ a}$ bestimmt wurden. Dazu sind in Bild 5.19 die Daten aus den entsprechenden Messungen und der Volumenmodellierung veranschaulicht. Zusätzlich zu den bereits in Bild 5.17 dargestellten Vergleichen für eine Alterungszeit $t_a = 2000\text{ h}$ findet sich in Bild 5.19 auch eine Gegenüberstellung für $t_a = 8760\text{ h}$. Die bereits in Bild 5.17 festgestellte Tendenz zu leicht größeren Modellierungsergebnissen gegenüber den Versuchsergebnissen zeigt sich für $t_a = 2000\text{ h}$ auch in Bild 5.19. Dabei kann sogar eine geringfügige Zunahme dieser Entwicklung beobachtet werden. Anhand der vorliegenden Ergebnisse ist denkbar, dass insbesondere die zur Verfügung stehende Da-

Eine Gitterauflösung von 2000 linear verteilten Werten für Alterungszeiten bis $t_a = 5000\text{ h}$ hat sich in der verwendeten Hardwareumgebung als guter Kompromiss zwischen möglichst genauer Modellierung und vertretbarer Berechnungsdauer erwiesen. Um nun aber auch zu untersuchen, inwiefern sich die vorgeschlagene Modellierungstechnik von Lebensdauer volumina in Abhängigkeit von einer im Laufe der Zeit größer werdenden Datenbasis als geeignet erweist, wurde das Modellierungsverfahren kontinuierlich überprüft. Insbesondere wurde bei Vorliegen von neuen Versuchsdaten mit längeren Beanspruchungszeiten auch analysiert, ob sich durch die Berücksichtigung zusätzlicher Daten, die durch Hermite-Interpolationen in Verbindung mit dem Ansatz von *Montefusco* bestimmt wurden, eine Ver-

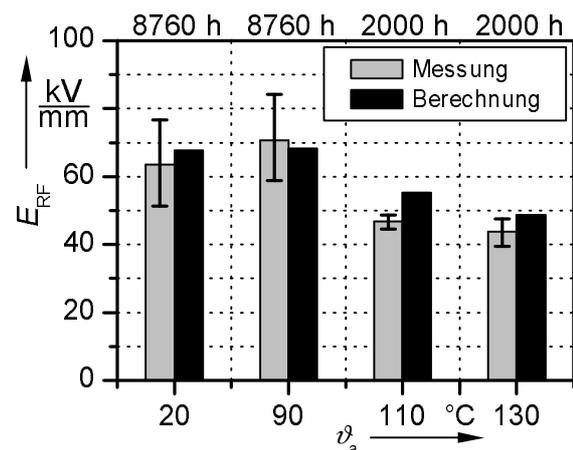


Bild 5.19: Vergleich von elektrischen Restfestigkeiten E_{RF} aus Versuchsdaten und berechneten Werten für Probenkollektive mit verschiedenen Alterungszeiten t_a sowie unterschiedlichen Alterungstemperaturen ϑ_a ($E_a = 13,1\text{ kV/mm}$)

tenstruktur bei vergleichsweise kurzen Alterungsdauern mit einer höheren Unsicherheit behaftet ist, oder eine Veränderung des Isolationszustandes, der sich mit den in Kapitel 3 beschriebenen Untersuchungsverfahren detektieren lässt, tritt bei thermischen Beanspruchungen unterhalb der Kristallschmelztemperatur nur nach im Vergleich zu $t_a = 2000$ h deutlich längeren Alterungszeiten auf. Diese Auffassung kann insofern erhärtet werden, als dass die in Bild 5.19 zusätzlich dargestellten Resultate für Alterungszeiten $t_a = 8760$ h gut mit den experimentell ermittelten Versuchsgrößen übereinstimmen. Die Resultate der Volumenmodellierung liegen dabei deutlich innerhalb der entsprechenden 95%-Vertrauensgrenzen, die im Rahmen der Weibull-Auswertung der Versuchsdaten ermittelt wurden.

Das nachstehende Bild 5.20 zeigt die Volumendarstellung, die mit Hilfe des beschriebenen Modellierungsverfahrens bestimmt und zur Extraktion der in Bild 5.19 verwendeten Berechnungsgrößen herangezogen wurde, wobei Gitterauflösungen von 20, 5000 und 41 linear

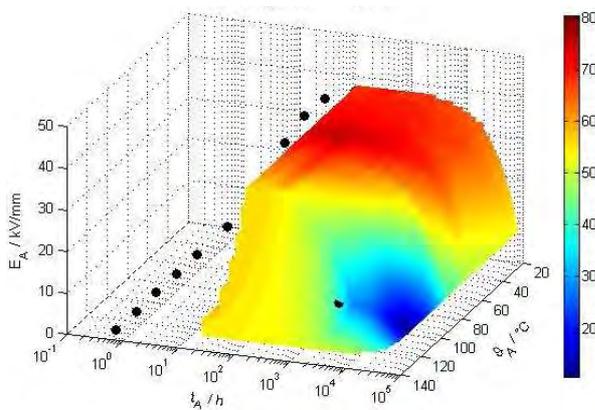


Bild 5.20: Volumendarstellung auf der Basis von Eingangsdaten mit Alterungszeiten $t_a \leq 10$ a (• = Stützstellen; Farbbalken = berechnete elektrische Restfestigkeit E_{RF})

verteilten Werten innerhalb der Datenbereiche $\vartheta_a = 20$ °C...130 °C, $t_a = 0,5$ h...10 a und $E_a = 0$ kV/mm...42 kV/mm verwendet wurden. Die entsprechend berechneten elektrischen Restfestigkeiten sind dabei farblich skaliert zwischen 10 kV/mm und 80 kV/mm visualisiert. Eine Abweichung von den zuvor genutzten Gitterauflösungen wurde im Wesentlichen aufgrund von zu langen Berechnungszeiten für den hier vorliegenden Datensatz notwendig. Ausblickend ist sicherlich der Einfluss von den jeweils vorgegebenen Gitterauflösungen für die Volumenmodellierung auf die Berechnungsergebnisse sowie die praktische Nutzbarkeit der Methode genauer systematisch zu untersuchen.

Die in Bild 5.20 in Form von Stützstellen zusätzlich dargestellten Versuchswerte verdeutlichen jedoch das in Richtung zukünftiger Beanspruchungszeiten interpolierende Modellierungsverfahren. Dabei sind, wie zuvor bei den in Kapitel 5.3.1 für Versuchsdaten mit $t_a \leq 5000$ h genutzten Werten für den Vergleich zwischen Berechnungs- und Messergebnissen bei $t_a = 2000$ h, auch für $t_a = 8760$ h die vorliegenden experimentellen Werte nicht mit im Eingangsdatensatz für das Modellierungsverfahren enthalten. Damit ist eine unabhängige Gegenüberstellung der analytischen und experimentellen Resultate möglich.

Die vorstehend dargestellten Ergebnisse hinsichtlich der Arbeitsweise und Genauigkeit des entwickelten Modellierungsverfahrens zur Darstellung von Volumendaten zeigen die grundsätzliche Anwendbarkeit der Methode. Insbesondere wurde im Hinblick auf Abschätzungen für zukünftig zu erwartende elektrische Restfestigkeiten von elektrisch und thermisch beanspruchten VPE-Isolierungen für Energiekabelanwendungen, selbst bei Vorlage eines spärlichen Datenumfanges, eine Methodik entwickelt, die die Komplexität von Alterungsprozessen mit überlagerten Beanspruchungsgrößen erfasst und ohne analytische Formulierungen mit in der Regel zahlreichen synergistischen Gleichungstermen auskommt. Es steht damit eine kontinuierlich auf seine Ge-

nauigkeit hin überprüfbare Vorgehensweise zur Verfügung, mit der modellierte zukünftige Erwartungswerte mit Experimentaldaten verglichen werden können. Dafür ist ein zeitbasiertes Konzept zur Durchführung von diagnostischen Untersuchungen an in Betrieb befindlichen Kabelstrecken notwendig.

Auf der Datengrundlage der in Bild 5.20 abgebildeten Volumendarstellung wird abschließend noch eine praktische Aufgabenstellung betrachtet, die die Anwendungsmöglichkeit des Modellierungsverfahrens aufgezeigt. Ausgehend von einer Alterungsfeldstärke $E_a = 20$ kV/mm sowie einer Alterungstemperatur $\vartheta_a = 80$ °C wird durch den Programmanwender eine maximal zulässige elektrische Restfestigkeit von beispielsweise 55 kV/mm vorgegeben. Daraus leitet sich eine entsprechende Alterungsdauer von $t_a = 6,2$ a ab. Wird nun das thermische Alterungsniveau auf $\vartheta_a = 90$ °C gesteigert, nimmt die dazugehörige Alterungszeit auf $t_a = 3,7$ a ab. Dies entspricht einer Reduktion um etwa 40 %, die aufgrund der Kombination von vergleichsweise langer Dauer und hoher Temperatur anhand der in der Arbeit gewonnenen Erkenntnisse durchaus möglich ist. Zur Überprüfung der Reduktionsdynamik wurde ein weiteres Beispiel getestet, dass jedoch deutlich kürzere Alterungszeiten beinhaltet und dementsprechend eine geringere Zeitabnahme aufweisen müsste. Es wird ausgehend von gleichen Alterungsbeanspruchungen durch den Nutzer eine elektrische Restfestigkeit von 68 kV/mm zugelassen. Durch Anwendung des Modellierungsverfahren wird dafür eine entsprechende Beanspruchungszeit von etwa einem Jahr ermittelt. Wird nun wiederum die Alterungstemperatur auf 90 °C erhöht, reduziert sich die Alterungsdauer auf ca. 0,8 a. Damit ergibt sich eine Verminderung um 20 %, die der zuvor aufgezeigten Reduktionstendenz entspricht.

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit experimentellen Untersuchungen zum Einsatz diagnostischer Verfahren zur Analyse des Alterungsverhaltens VPE-isolierter Hochspannungskabel. Dabei dienen die mit Hilfe der angewandten Diagnosemethoden ermittelten Versuchsergebnisse als Basis für eine Beurteilung des Betriebsmittelzustandes. Derartige Zustandsbewertungen sind für die Betreiber von Betriebsmitteln der elektrischen Energieversorgung seit der Liberalisierung der Energiemärkte von besonderer Bedeutung, da vor wirtschaftlichen Hintergründen neben einer Lastoptimierung vor allem eine Verlängerung der Restnutzungsdauer der Komponenten angestrebt wird. Die Entwicklung effektiver Diagnoseverfahren einschließlich analytischer Methoden zur Quantifizierung der ermittelten Messergebnisse hat daher in den letzten Jahren einen zunehmenden Stellenwert erlangt. Es ist dabei jedoch zu berücksichtigen, dass im Hinblick auf eine Frühindikation durch rechtzeitige Registrierung von Veränderungen diagnostizierbarer Größen sowie deren Interpretation grundlegende Erkenntnisse über eigenschaftsmindernde Degradationsprozesse in Abhängigkeit der Beanspruchungszeit vorliegen müssen.

Zu diesem Zweck wurden im Rahmen der Untersuchungen Versuchsumgebungen für elektrische Prüfungen, dielektrische Spektroskopien im Zeit- und Frequenzbereich und physikalische Materialanalysen erstellt und geeignete Auswertemethoden zur Bestimmung charakteristischer Kennwerte für Zustandsbewertungen implementiert. Darüber hinaus wurde eine Methode zur Modellierung so genannter Lebensdauer volumina entwickelt, die als Hilfsmittel zur Analyse des Verhaltens diagnostischer Kennwerte in Abhängigkeit von den Beanspruchungsparametern elektrische Feldstärke E_a , Temperatur ϑ_a und Zeit t_a dient und zur Zustandsbewertung von VPE-isolierten Hochspannungskabeln eingesetzt werden kann. Für die Versuche wurde ein Modellkabel mit VPE-Isolierung eingesetzt, das bezüglich der Konstruktion, den verwendeten Leitschichten und dem Herstellungsprozess einem realen Hochspannungskabel aktueller Fertigungstechnologie entspricht. Lediglich die Isolierwandstärke wurde reduziert ausgeführt, um den apparativen Prüfaufwand zu reduzieren. Grundsätzlich wird das Alterungsverhalten von VPE-isolierten Hochspannungskabeln durch viele Größen beeinflusst. So sind Kabelparameter, wie Konstruktion, Ausführung der inneren und äußeren Leitschicht, Reinheitsgrad des Isolierstoffes und Vernetzungsart, sowie die Betriebsparameter Temperatur, elektrische Feldstärke und mechanische Beanspruchung bei Alterungsanalysen relevant. Aufgrund der jahrelangen guten Erfahrung mit VPE-isolierten Kabeln und den durchgeführten fertigungsbegleitenden Prüfungen spielen jedoch die meisten konstruktiven Kabelgrößen heutzutage bei der Beurteilung der Alterung keine Rolle mehr. Für Alterungserscheinungen von gegenwärtig gefertigten VPE-isolierten Hochspannungskabeln sind deshalb besonders die Betriebsparameter Temperatur und elektrische Feldstärke zu betrachten. Deshalb wurden die untersuchten Probenkollektive zu Beginn einem entsprechenden Alterungsprogramm unterzogen, bei dem die Beanspruchungsparameter elektrische Feldstärke und Leitertemperatur von 0 kV/mm bis ca. 52 kV/mm und 50 °C bis 130 °C variiert wurden, und die maximal mögliche Beanspruchungsdauer 8760 h betrug. Die wesentlichen Erkenntnisse der Arbeit können wie folgt zusammengefasst werden:

Elektrische Anfangs- und Restfestigkeit von VPE-isolierten Modellkabeln

- Die Versuchsergebnisse zur Ermittlung der Anfangsfestigkeit ergeben bei einem Vergleich mit in der entsprechenden Fachliteratur dokumentierten Resultaten, dass das verwendete Mo-

dellkabel eine Isolierstoffqualität aufweist, die den gegenwärtigen Materialstandards von Energiekabeln im Hoch- und Höchstspannungsbereich entspricht.

- Mit zunehmender Erwärmung nimmt die Anfangsfestigkeit der Modellkabel zunächst bis zu einer Leitertemperatur von etwa 70 °C zu. Eine weitere Steigerung der Temperatur resultiert in einer Abnahme der entsprechenden Festigkeitswerte. Insgesamt stellt sich im untersuchten Temperaturbereich von 20 °C bis 130 °C eine geringfügige Reduktion der elektrischen Anfangsfestigkeit ein. Als Ursache für das festgestellte Verhalten sind zwei gegenläufige Effekte maßgeblich. Der initiale Festigkeitszuwachs basiert vorwiegend auf einem thermisch bedingten Abbau innerer mechanischer Spannungen, dem sich bei höheren Temperaturen ein Anstieg der elektrischen Leitfähigkeit überlagert. Bei Temperaturen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur dominiert schließlich die Leitfähigkeitszunahme und führt insgesamt zu einer Abnahme der elektrischen Festigkeit.
- Die elektrische Restfestigkeit VPE-isolierter Modellkabel ist bis zu einer maximalen Alterungstemperatur von 90 °C bei gleichzeitiger elektrischer Wechselfeldbeanspruchung mit 13,1 kV/mm in einem Zeitraum bis 5000 h annähernd temperaturunabhängig. Ursächlich dafür sind dem Isolierstoff beim Fertigungsprozess beigefügte Antioxidantien, die eine thermisch-oxidative Polymerdegradation unterbinden sowie eine nur schwach ausgeprägte Modifikation der Werkstoffmorphologie infolge des Temperatureinflusses. Höhere Temperaturbeanspruchungen äußern sich hingegen in einem deutlichen Festigkeitsabfall, da aufgrund von verstärkten morphologischen Materialveränderungen eine Vergrößerung amorpher Bereiche initiiert wird, die durch höhere Ladungsträgerbeweglichkeiten und damit größere Leitfähigkeiten charakterisiert sind. Zusätzlich wirkt sich ein bei hohen Temperaturen beschleunigter Verbrauch von Antioxidantien in einem thermisch-oxidativen Materialabbau aus. Eine Beeinflussung der Restfestigkeit durch elektrische Feldeffekte bei Applikation der etwa fünfzehnfachen Betriebsfeldstärke für 100 h ist vorhanden. Jedoch ist die im untersuchten Temperaturbereich beobachtete Festigkeitsabnahme nur gering.
- Eine Verlängerung der Alterungsdauer führt erst nach einer ausreichend langen Periode zu feststellbaren Abnahmen der elektrischen Restfestigkeit. Dabei ist der Umfang der Verminderung vom thermischen Beanspruchungsniveau abhängig. Die durchgeführten physikalischen Materialanalysen zeigen, dass im Wesentlichen für die Reduktion der elektrischen Restfestigkeit Veränderungen der Materialmorphologie ursächlich sind. Darüber hinaus signalisieren die vorwiegend festgestellten Modifikationen des Kristallinitätsgrades eine deutliche Interferenz durch komplexe Wechselwirkungen zwischen thermischen und zeitlichen Einflussgrößen.

Dielektrische Spektroskopien von VPE-isolierten Modellkabeln im Zeit- und Frequenzbereich

- Bei heterogenen und nicht isotropen Polymerwerkstoffen ist aufgrund ihrer komplexen Materialstruktur davon auszugehen, dass dielektrische Relaxationen in Form von sich verbreitet überlagernden Relaxationsmechanismen mit verteilten charakteristischen Relaxationszeiten formuliert werden können. Für verlustarme VPE-Isolierungen stellen daher charakteristische Relaxationszeitkonstanten $\tau_{1...3}$ auf der Basis einer abfallenden Exponentialfunktion 3. Ordnung aussagefähige Kenngrößen zur Beschreibung des isothermen Depolarisationsverhaltens dar. Eine eindeutige Korrelation zwischen den Kennwerten $\tau_{1...3}$ und den applizierten Alterungsbeanspruchungen ist aufgrund von komplexen Wechselwirkungen zwischen

elektrisch und thermisch verursachten Veränderungen der Materialmorphologie sowie im Ladungsträger- und Polarisationsverhalten des Isolierstoffes oft erst möglich, wenn bestimmte beanspruchungsabhängige Schwellwertbereiche überschritten und ausreichend sensitive Messverfahren eingesetzt werden. Weiterhin wird eine vollständige Abgrenzung der verantwortlichen Relaxationsvorgänge dadurch erschwert, dass die gesamten Ladungstransport- und Polarisationsprozesse in vernetztem Polyethylen als dynamische Vorgänge und nicht als stationäre Abläufe zu betrachten sind. Die am Stromfluss beteiligten Ladungsträger befinden sich somit nicht im thermodynamischen Gleichgewicht, da die Ladungsträgerbeweglichkeit in VPE wesentlich durch interstitielle Zonen zwischen amorphen und kristallinen Bereichen bestimmt wird. Eine Abhängigkeit der Relaxationszeitkonstanten $\tau_{1...3}$ von äußeren die Materialmorphologie beeinflussenden Beanspruchungsgrößen ist somit grundlegend gegeben.

- Das Verhalten von charakteristischen Kennwerten aus im Zeitbereich ermittelten Depolarisationsstromverläufen weist für die Relaxationszeitkonstanten τ_1 und τ_3 in Abhängigkeit von den Alterungsparametern E_a , ϑ_a und t_a ein Trendverhalten hin zu größeren Werten mit zunehmenden Beanspruchungen auf. Damit die einzelnen Entwicklungstendenzen der Kennwerte jedoch erkennbar sind, müssen erst die Voraussetzungen durch die Auswirkungen entsprechender Kombinationen von E_a , ϑ_a und t_a auf die Materialstruktur geschaffen werden. Die ursächlichen Effekte werden daher auf schwellwertbasierte Phänomene zurückgeführt. Bei teilkristallinem VPE treten erst bei Beanspruchung mit Temperaturen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur Veränderungen im Materialgefüge auf, die durch eine entsprechende Analyse von isothermen Depolarisationsströmen in Form von Entwicklungstendenzen abgebildet werden können.
- Thermische Beanspruchungen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur und darüber verursachen infolge der daraus resultierenden Abnahme des Kristallinitätsgrades eine Reduktion der für Ladungsträgerspeicherungen vorzugsweise genutzten Grenzflächenbereiche zwischen amorphen und kristallinen Domänen. Dadurch verändert sich die statistische Verteilung energetisch lokalisierter Zustände, wodurch die Wahrscheinlichkeit von Ladungsträgertransporten aus „traps“ abnimmt und sich in einer verminderten TSD-Aktivität äußert.
- Die in einem Frequenzbereich von 1 mHz bis 1 kHz durchgeführten dielektrischen Spektroskopien weisen charakteristische Verlustmaxima auf, dessen Frequenzlage jedoch aufgrund von Synergieeffekten bei gleichzeitiger elektrischer und thermischer Alterungsbeanspruchung variiert. Längere Beanspruchungsdauern mit höheren Temperaturen führen tendenziell zu einer Verschiebung der Maxima hin zu niedrigeren Frequenzen, und die Höhe der $\tan \delta$ -Werte im Bereich hoher Temperaturen nimmt infolge der Vergrößerung amorpher Zonen sowie eines langsam einsetzenden Verlustes an thermisch-oxidativer Stabilität zu.
- Morphologische Materialveränderungen aufgrund von Beanspruchungen mit hohen Temperaturen können mit Verlustfaktormessungen bei einer Frequenz von 0,1 Hz besser aufgelöst werden als mit entsprechenden Messungen bei 50 Hz. Der Auflösegrad im Verlustfaktorverhalten nimmt dabei mit längeren Beanspruchungszeiten zu und ist bei höheren Temperaturen stärker ausgeprägt. Als Ursachen für die Erhöhung des Verlustfaktors $\tan \delta$ bei 0,1 Hz sind die mit längerer Alterungsdauer höhere Wahrscheinlichkeit struktureller Veränderungen der Materialmorphologie infolge thermischer Beanspruchung sowie ein einsetzender thermisch-oxidativer Polymerabbau auszumachen.

Physikalische Materialanalysen von VPE-isolierten Modellkabeln

- Unilaterale NMR-Spektroskopien mit Oberflächenspulen können bei Anregung mit CPMG-Echosequenzen auch bei vergleichsweise harten Polymeren, wie VPE, genutzt werden, um das Verhalten von Spin-Spin-Relaxationen zu untersuchen. Bei einer Larmorfrequenz von 20 MHz und einer Pulslänge von 5,8 μs können mit 200 Echos Signalintensitäten von ca. 40 % erreicht werden.
- Das transversale Relaxationsverhalten der untersuchten VPE-isolierten Modellkabel ist von der morphologischen Struktur des Polymeren abhängig. Die als diagnostische Kenngröße extrahierte effektive transversale Relaxationszeit $T_{2, \text{eff}}$ ist sensitiv hinsichtlich langsamer molekularer Beweglichkeiten von Protonspins, die über dipolare Kopplungen in der Polymerkette gebunden sind. Bei der Zunahme von thermischen und zeitlichen Alterungsbeanspruchungen ergibt sich ein Anstieg von $T_{2, \text{eff}}$ infolge einer thermisch verursachten Reduktion der Vernetzungsdichte und einer Vergrößerung des freien Volumens aufgrund höher Kettenbeweglichkeiten in amorphen Bereichen. Langsamere transversale Relaxationen treten auch aufgrund von erhöhten Wahrscheinlichkeiten für das Auftreten von Kettenfluktuationen nach hohen elektrischen Feldbeanspruchungen mit etwa fünfzehnfacher Betriebsfeldstärke für eine Dauer von 100 h auf.
- Spezielle Auswertungen bezüglich der relativen Masseanteile von Protonen in kristallinen und amorphen Domänen eignen sich zur Detektion von vorwiegend thermisch bedingten morphologischen Modifikationen der Materialstruktur, da sie Indikatoren für Polymerketten mit Vernetzungsknoten und Ketten mit freien Enden darstellen. Bei den über 5000 h mit 13,1 kV/mm vorbeanspruchten VPE-Proben zeigt sich bis zu Alterungstemperaturen von 100 °C eine Abnahme der entsprechenden molekularen Beweglichkeit, die vorwiegend auf Nachkristallisationen innerhalb der Polymerstruktur zurückzuführen ist. Eine Erhöhung der Alterungstemperatur in den Bereich der Kristallitschmelztemperatur und höher äußert sich dementsprechend in einer Vergrößerung der amorphen Bereiche.
- Mit Hilfe von FTIR-Spektroskopien wird innerhalb der VPE-Isolierung im Grenzflächenbereich zur inneren Leitschicht ein deutlicher Anstieg des Carbonylgruppengehaltes nach längeren thermischen Beanspruchungen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur festgestellt. Aufgrund der unterschiedlichen Elektronegativitäten von Kohlenstoff und Sauerstoff wird dadurch eine erhöhte Reaktivität eingeleitet, die zu einer fortschreitenden Materialdegradation führt. In der Nähe der Grenzschicht zur äußeren Leitschicht bleibt der Gehalt an Carbonylgruppen aufgrund des geringeren Temperaturniveaus infolge des über der Isolierung vorliegenden Temperaturgradienten nahezu unverändert.
- Vergleiche auf der Basis von FTIR-Spektroskopien zur Erfassung von Synergieeffekten nach einer 5000-stündigen Alterung zeigen im Bereich der Kristallitschmelztemperatur einen Einfluss von zusätzlich wirkenden gemäßigten Wechselfeldbeanspruchungen auf das thermische Aktivierungspotenzial hinsichtlich von Materialdegradationen. Oberhalb der Kristallitschmelztemperatur steigt dabei der Carbonylgruppengehalt im Gegensatz zu Temperaturen unterhalb der Kristallitschmelztemperatur an, so dass von schwellwertbasierten Wechselwirkungen zwischen elektrischen und thermischen Alterungsbeanspruchungen auszugehen ist. Vergleichbare Tendenzen hinsichtlich der Wechselwirkungsaktivitäten zwischen elektrischem und thermischem Stress ergeben sich auch bei Betrachtung des Vinylidengruppengehaltes der entsprechenden Proben, der vernetzungsrelevante Materialumsetzungen charakterisiert.

- Der Kristallinitätsgrad von VPE-isolierten Kabelproben nach einer Alterungsbeanspruchung mit 13,1 kV/mm für 5000 h durchläuft anhand von Dichtemessungen mit der Pyknometermethode sowie Auswertungen von FTIR-Spektroskopien mit zunehmenden Alterungstemperaturen ein Maximum. Verfahrensbedingt variieren die dazugehörigen Temperaturen jedoch zum Teil erheblich. Im untersuchten Temperaturbereich zeigen beide Verfahren insgesamt eine Reduktion des Kristallinitätsgrades nach hohen thermischen Beanspruchungen gegenüber ausschließlich elektrischem Stress.

Modellierung von Lebensdauervolumina auf der Basis von Flächenformulierungen mit spärlich verteilten Eingangsdaten aus diagnostischen Untersuchungen an VPE-isolierten Modellkabeln

- Es wurde ein Modellierungsverfahren zur Visualisierung so genannter Lebensdauervolumina entwickelt, das die aus den experimentellen Versuchen abgeleiteten zustandsbeschreibenden Kenngrößen, wie elektrische Restfestigkeit E_{RF} , Relaxationszeitkonstante τ_i , dielektrischer Verlustfaktor $\tan \delta_{0,1 \text{ Hz}}$ oder effektive transversale Relaxationszeit $T_{2, \text{eff}}$ als skalare Eingangsdaten nutzt und zur Analyse von beispielsweise zukünftig zu erwartenden elektrischen Restfestigkeiten oder Relaxationszeitkonstanten in Abhängigkeit von elektrischen, thermischen und zeitlichen Alterungsgrößen verwendet werden kann. Das Lebensdauervolumen wird dabei von den Randflächen der drei Beanspruchungsgrößen elektrische Feldstärke E_a , Temperatur ϑ_a und Zeit t_a für $E_a = \vartheta_a = t_a = 0$ sowie einer charakteristischen mit Hilfe von radialen Basisfunktionen bestimmten Oberfläche gebildet.
- Das Verfahren basiert auf Techniken der wissenschaftlichen Visualisierung aus dem Bereich der Computergraphik, die spezielle Möglichkeiten zur Modellierung spärlich im Raum verteilter Datenpunkte eröffnen. Es ist dabei keine Information hinsichtlich der Verbindungsart der einzelnen Datenpunkte untereinander in den Raumachsen notwendig, so dass entsprechende analytische Formulierungen mitsamt in der Regel wählbaren Gleichungsparametern nicht benötigt werden. Damit unterscheidet sich das entwickelte Verfahren von den in der entsprechenden Fachliteratur vorgestellten phänomenologischen und thermodynamischen Ansätzen zur Beschreibung von „multifactor aging“-Phänomenen.
- Die Basis für die Volumenmodellierung wird durch eine Flächenbestimmung mit hoher Genauigkeit gebildet. Dafür werden spärlich vorliegende Experimentalwerte sowie mit Hilfe von Hermite-Interpolationen zusätzlich ermittelte Stützstellen verwendet. Diese Größen bilden den Eingangsdatensatz für eine multivariate Approximation mit Hilfe von radialen Basisfunktionen. Parameterstudien zeigen, dass mit einer Gaussfunktion als RBF-Typ sowie einem „shape parameter“ von sieben und einer Gleichungsanzahl von fünfzig ein guter Kompromiss zwischen Approximationsgüte und Glattheit erzielt werden kann.
- Bei der Bestimmung der Volumendarstellung werden die Daten der Flächenformulierung wertkonform auf ein gleichmäßiges dreidimensionales Gitter mit Hilfe einer *Delaunay*-Triangulation interpoliert. Die Erzeugung des Gitternetzes erfolgt durch eine Nutzereingabe, mit der die Auflösung sowie die Berechnungsdauer gesteuert werden kann. Datenpunkte im Randbereich der Volumendarstellung können unter Umständen aufgrund von Rundungseffekten nicht mehr eindeutig bestimmt werden.
- Zur Darstellung der ermittelten Volumendaten können die mehrdimensionalen Ergebnisarrays mittels „slicing“-Technik visualisiert werden. Dabei erfolgte die Abbildung der einzelnen Schichten auf dem gewählten Gitternetz jeweils dreidimensional.

Fazit

- Mit den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten zahlreichen experimentellen Untersuchungen werden Korrelationen zwischen numerischen Kennwerten, die den Isolationszustand von in Hochspannungskabeln eingesetzten VPE-Isolierungen charakterisieren, und vielfältig interferierenden elektrischen, thermischen und zeitlichen Beanspruchungsgrößen aufgezeigt. Die ermittelten Abhängigkeiten werden durch physikalische Analysen zur Abbildung der Materialmorphologie sowie zur Darlegung chemischer Reaktionen verifiziert. Als numerische Kenngrößen sind die elektrische Restfestigkeit E_{RF} , die Relaxationszeitkonstanten τ_1 und τ_3 , der dielektrische Verlustfaktor $\tan \delta_{0,1 \text{ Hz}}$ sowie die effektive transversale Relaxationszeit $T_{2, \text{eff}}$ nutzbar.
- Die Ergebnisse legen dar, dass zahlreiche Effekte, die den Isolationszustand von vernetztem Polyethylen beeinflussen, auf schwellwertbasierte Phänomene zurückzuführen sind.
- Mit Hilfe des entwickelten Modellierungsverfahrens können so genannte Lebensdauervolumina berechnet und visualisiert werden. Als Eingangsdaten werden die aus den diagnostischen Untersuchungen ermittelten Kennwerte verwendet, dessen zu Anfang in der Regel spärlicher Umfang durch geeignete Interpolationstechniken vergrößert werden kann.
- In der Praxis können gegenwärtig dielektrische Spektroskopien im Zeit- und Frequenzbereich an bereits verlegten Energiekabeln durchgeführt werden. Somit lassen sich zerstörungsfrei diagnostische Kennwerte ermitteln, die im Laufe der Betriebsdauer sukzessiv in eine Lebensdauermodellierung eingebunden werden und bei zuvor durchgeführter interpolatorischer Integration zukünftiger Daten zu deren Überprüfung dienen können. Dabei hat die Aufnahme der Kenngrößen bei der Inbetriebsetzung eine besondere Bedeutung, da damit die Ausgangssituation ermittelt wird, die die Basis für spätere Vergleiche festlegt.
- Zukünftig könnte die Adaption unilateraler Oberflächenspulen zur Erfassung der molekularen Mobilität innerhalb polymerer Isolierstoffe in Form mobiler Geräte für eine Vor-Ort-Messung an verlegten Energiekabeln einen weiteren Beitrag zur ganzheitlichen Zustandsbewertung von VPE-isolierten Hochspannungskabeln leisten.

Schrifttum

- [Adamec1978] Adamec, V. ; Calderwood, J. H.: *Electrical conduction and polarisation phenomena in polymeric dielectrics at low fields*, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 11, No. 6, 1978, pp. 781-800
- [Agarwal1995] Agarwal, V. K. ; Banford, H. M. ; Bernstein, B. S. ; Brancato, E. L. ; Fouracre, R. A. ; Montanari, G. C. ; Parpal, J. L. ; Seguin, J. N. ; Ryder, D. M. ; Tanaka, J.: *The mysteries of multifactor ageing*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 11, No. 3, 1995, pp. 37-43
- [Aida1990] Aida, F. ; Tanimoto, G. ; Aihara, M. ; Hosokawa, E.: *Influence of curing by-products on dielectric loss in XLPE insulation*, IEEE International Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Pocono Manor, 1990, pp. 465-473
- [Akermark1999] Akermark, G.: *Vernetztes Polyethylen*, Kabelextrusion 1999 – Polymere Werkstoffe - Verfahrensschritt Extrusion - Anlagenkomponenten, Bad Homburg, 1999, S. 265-293
- [Andreß1983] Andreß, B. ; Fischer, P. ; Röhl, P.: *Untersuchung der Diffusion und Sättigungskonzentration von Additiven in Polyolefinen*, Siemens Forschungs- und Entwicklungsberichte, Bd. 12, Nr. 3, 1983, S. 155-160
- [Andreß1984] Andreß, B. ; Fischer, P. ; Repp, H. ; Röhl, P.: *Diffusion losses of additives in polymeric cable insulation*, IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Montreal, 1984, pp. 65-67
- [Anferova2002] Anferova, S. ; Anferov, V. ; Adams, M. ; Blümmler, P. ; Routley, N. ; Hailu, K. ; Kupferschläger, K. ; Mallett, M. ; Schroeder, G. ; Sharma, S. ; Blümich, B.: *Construction of a NMR-MOUSE with short dead time*, Concepts in Magnetic Resonance (Magnetic Resonance Engineering), Vol. 15, No. 1, 2002, pp. 15-25
- [Artbauer1970] Artbauer, J.: *Elektrische Durchschlagfestigkeit fester Isolierstoffe*, VDK-Mitteilungen, Nr. 13, 1970, S. 1-6
- [Artbauer1996] Artbauer, J.: *Electric strength of polymers*, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 29, No. 2, 1996, pp. 446-456
- [Asmuth1982] Asmuth, P.: *Das Durchschlagverhalten von vernetztem Polyethylen nach unterschiedlicher Vorbelastung*, Dissertation, Universität Hannover, 1982

- [Auckland1990] Auckland, D. W. ; McNicol, A. A. ; Varlow, B. R.: *Development of strain in solid dielectric due to vibrational electrostatic forces*, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 23, No. 12, 1990, pp. 1608-1613
- [Audouin1995] Audouin, L. ; Langlois, V. ; Verdu, J. ; Rouyer, E.: *Stabilizer consumption and lifetime prediction in ageing of cross-linked polyethylene*, Angewandte Makromolekulare Chemie, Vol. 232, No. 1, 1995, pp. 1-12
- [Bach1993] Bach, R. ; Kalkner, W. ; Oldehoff, H.: *Verlustfaktormessung bei 0,1 Hz an betriebsgealterten PE/VPE-Kabelanlagen*, Elektrizitätswirtschaft, Jg. 92, H. 17/18, 1993, S. 1076-1080
- [Bald1974] Bald, G. ; Markert, H.: *Beitrag zur infrarotspektroskopischen Bestimmung des Methylgruppen- und Doppelbindungsgehaltes von Polyäthylen niederer Dichte*, Zeitschrift für Analytische Chemie, Bd. 268, 1974, S. 360-366
- [Bartnikas1983] Bartnikas, R.: *Dielectric loss in solids*, in Bartnikas, R. ; Eichhorn, R. M. (Hrsg.): *Engineering dielectrics, Vol. II A, Electrical properties of solid insulating materials: molecular structure and electrical behaviour*, Philadelphia, ASTM STP 783, 1983, pp. 3-118
- [Bartnikas1987] Bartnikas, R.: *Alternating-current loss and permittivity measurements*, in Bartnikas, R. ; Eichhorn, R. M. (Hrsg.): *Engineering dielectrics, Vol. II B, Electrical properties of solid insulating materials: measurement techniques*, Philadelphia, ASTM STP 926, 1987, pp. 52-157
- [Bartnikas2000] Bartnikas, R.: *Dissipation factor, partial-discharge, and electrical aging tests on power cables*, in Bartnikas, R. ; Srivastava, K. D. (Hrsg.): *Power and communication cables – theory and applications*, IEEE Press McGraw-Hill, New York, 2000, pp. 393-418
- [Batzer1985] Batzer, H.: *Polymere Werkstoffe – Chemie und Physik*, Bd. 1, Thieme-Verlag, Stuttgart, 1985
- [Bauser1972] Bauser, H.: *Ladungsspeicherung in Elektronenhaftstellen in organischen Isolatoren*, Kunststoffe, Bd. 62, Nr. 3, 1972, S. 192-196
- [Beigert1995] Beigert, M.: *Mikrodielektrometrische zerstörungsfreie Alterungsdiagnostik von PE- und VPE-isolierten Mittelspannungskabeln*, Dissertation, BUGH Wuppertal, 1995
- [Bender2003] Bender, M. ; Brill, M.: *Computergrafik – Ein anwendungsorientiertes Lehrbuch*, Hanser-Verlag, München, 2003

- [Beyer1986] Beyer, M. ; Boeck, W. ; Möller, K. ; Zaengl, W.: *Hochspannungstechnik – Theoretische und praktische Grundlagen für die Anwendung*, Springer-Verlag, Berlin, 1986
- [Bezille1994] Bezille, J. ; Janah, H. ; Chan, J. ; Hartley, M.: *Evolution of AC and impulse breakdown strength of HV XLPE cable after long term test – correlation with physical properties*, International Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Arlington, 1994, pp. 582-587
- [Bigg1996] Bigg, D. M.: *A review of positron annihilations lifetime spectroscopy as applied to the physical aging of polymers*, Polymer Engineering and Science, Vol. 36, No. 6, 1996, pp. 737-743
- [Bischoff2004] Bischoff, S. ; Kobbelt, L.: *Netzbasieretes Geometrisches Modellieren*, Informatik-Spektrum, Bd. 27, Nr. 6, 2004, S. 516-522
- [Blaise1995] Blaise, G.: *Space charge physics and the breakdown process*, Journal of Applied Physics, Vol. 77, No. 7, 1995, pp. 2916-2927
- [Blaise2001] Blaise, G.: *Charge localisation and transport in disordered dielectric materials*, Journal of Electrostatics, Vol. 50, No. 2, 2001, pp. 69-89
- [Blümich1995] Blümich, B. ; Spiess, H. W.: *NMR-Spektroskopie*, in Haarer, D. ; Spiess, H. W. (Hrsg.): *Spektroskopie amorpher und kristalliner Festkörper*, Dr. Dietrich Steinkopff-Verlag, Darmstadt, 1995, S. 3-28
- [Blümich2000] Blümich, B.: *NMR imaging of materials*, Monographs on the Physics and Chemistry of Materials 57, Clarendon Press, Oxford, 2000
- [Blümich2001] Blümich, B.: *NMR for product and quality control of elastomers*, Kautschuk Gummi Kunststoffe, Bd. 54, Nr. 4, 2001, S. 188-190
- [Blümich2002] Blümich, B. ; Demco, D. E.: *NMR imaging of elastomers*, in Litvinov, V. M. ; De Prajna, P. (Hrsg.): *Spectroscopy of rubbers and rubbery materials*, Rapra Technology Limited-Verlag, Shawbury, 2002, pp. 247-289
- [Blümich2003] Blümich, B. ; Anferova, S. ; Kremer, K. ; Sharma, S. ; Herrmann, V. ; Segre, A.: *Unilateral nuclear magnetic resonance for quality control*, Spectroscopy, Vol. 18, No. 2, 2003, pp. 18-32
- [Blümmler1994] Blümmler, P. ; Blümich, B.: *NMR imaging of solids*, in: *NMR basic principles and progress*, Vol. 30, Springer-Verlag, Berlin, 1994, pp. 209-281

- [Boggs1998] Boggs, S. ; Kuang, J.: *High field effects in solid dielectrics*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 14, No. 6, 1998, pp. 5-12
- [Borealis2004] Borealis Group: *Polyolefins data sheets*, [online], http://www.borealisgroup.com/public/customer/data_sheets/Data_sheets.jsp, WC 0541 16.07.2004 Ed. 11, 2004
- [Boström1997] Boström, J.-O. ; Gustafsson, B. ; Lindbom, L.: *XLPE compound for fast cable line speed*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 13, No. 5, 1997, pp. 33-36
- [Boström2002] Boström, J.-O. ; Campus, A. ; Hampton, R. N. ; Marsden, E.: *Reliable HV & EHV cables*, CIGRÉ-Session, Paris, 2002, Beitrag 21-105
- [Bowyer1981] Bowyer, A.: *Computing Dirichlet tessellations*, The Computer Journal, Vol. 24, No. 2, 1981, pp. 162-166
- [Brakelmann2004] Brakelmann, H.: *Netzverstärkungstrassen zur Übertragung von Windenergie – Freileitung oder Kabel?*, BWE-Studie, Rheinberg, 2004
- [Brehmer1981] Brehmer, L.: *Ladungsträgerbeweglichkeit in Polyethylen*, Acta Polymerica, Bd. 32, Nr. 8, 1981, S. 415-437
- [Brodlie2001] Brodlie, K. ; Wood, J.: *Recent advances in volume visualization*, Computer Graphics, Vol. 20, No. 2, 2001, pp. 125-148
- [Brüderlin2001] Brüderlin, B. ; Meier, A.: *Computergrafik und Geometrisches Modellieren*, Teubner-Verlag, Stuttgart, 2001
- [Brugg2007] N. N.: *Brugg Kabel AG gewinnt Aufträge für Hochspannungsanlagen für 28 Mio. USD in den Vereinigten Arabischen Emiraten*, Brugg Cables, Pressemitteilung, Brugg, 17. April 2007
- [Bube1960] Bube, R. H.: *Photoconductivity of solids*, John Wiley & Sons-Verlag, London, 1960
- [Buhmann2003] Buhmann, M. D.: *Radial basis functions – theory and implementations*, Cambridge Monographs on Applied and Computational Mathematics 12, Cambridge University Press, Cambridge, 2003
- [Bulinski1998] Bulinski, A. T. ; Crine, J.-P. ; Noirhomme, B. ; Densley, R. J. ; Bamji, S.: *Polymer oxidation and water treeing*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 5, No. 4, 1998, pp. 558-570

- [Bundestag2006] N. N.: *Wortprotokoll 16. Sitzung – Entwurf eines Gesetzes zur Beschleunigung von Planungsverfahren für Infrastrukturvorhaben*, Deutscher Bundestag, Ausschuss für Verkehr, Bau und Stadtentwicklung, Protokoll 16/16, Berlin, 17. Mai 2006
- [Burns1990] Burns Jr., N. M.: *Performance of supersmooth, extra clean semiconductive shields in XLPE insulated power cables*, IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Toronto, 1990, pp. 272-276
- [CIGRÉ2002] CIGRÉ Task Force 21.05 (new B1:05): *Experiences with AC tests after installation on the main insulation of polymeric (E)HV cable systems*, Électra, No. 205, 2002, pp. 26-36
- [CIGRÉ2005] CIGRÉ Technical Brochure 288, Task Force D1.12.1: *Guide for space charge measurements in dielectrics and insulating materials*, Électra, No. 223, 2005, pp. 53-63
- [Claudi2002] Claudi, A. ; Hauschild, W.: *Prüfungen, Monitoring und Diagnose im Lebenszyklus eines elektrischen Betriebsmittels*, ETG-Fachbericht 87, VDE-Verlag, Berlin, 2002, S. 13-20
- [Crine1991] Crine, J.-P. ; Pélassou, S. ; McNicoll, Y. ; St-Onge, H.: *A critical evaluation of analytical techniques for the characterization of extruded dielectric cables*, IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 26, No. 1, 1991, pp. 131-139
- [Crine2005] Crine, J.-P.: *On the interpretation of some electrical aging and relaxation phenomena in solid dielectrics*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 12, No. 6, 2005, pp. 1089-1107
- [Damamme1997] Damamme, G. ; Le Gressus, C. ; De Reggi, A. S.: *Space charge characterization for the 21th century*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, No. 5, 1997, pp. 558-584
- [Das-Gupta1992] Das-Gupta, D.: *Electrical properties of surfaces of polymeric insulators*, IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 27, No. 5, 1992, pp. 909-923
- [Das-Gupta1994] Das-Gupta, D.: *Polyethylene: structure, morphology, molecular motion and dielectric behavior*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 10, No. 3, 1994, pp. 5-15
- [Davidson1989] Davidson, R. ; Harel, D.: *Drawing graph nicely using simulated annealing*, Technical Report, Department of Applied Mathematics, Weizmann Institute of Science, Israel, 1989

- [Densley1994] Densley, R. J. ; Bartnikas, R. ; Bernstein, B.: *Multiple stress aging of solid-dielectric extruded dry-cured insulation systems for power transmission cables*, IEEE Transaction on Power Delivery, Vol. 9, No. 1, 1994, pp. 559-571
- [Dissado1992] Dissado, L. A. ; Fothergill, J. C.: *Electrical degradation and breakdown in polymers*, Peter Peregrinus Ltd., London, 1992
- [Dlubek1998] Dlubek, G. ; Saarinen, K. ; Fretwell, H. M.: *The temperature dependence of the local free volume in polyethylene and polytetrafluoroethylene – a positron lifetime study*, Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics, Vol. 36, 1998, pp. 1513-1528
- [Dokopoulos1968] Dokopoulos, P.: *Die Durchschlagwahrscheinlichkeit von Hochspannungsisolierungen*, ETZ-A, Bd. 89, Nr. 7, 1968, S. 145-148
- [Ebert1992] Ebert, J.: *IRTRAINS – Ein infrarotspektroskopisches Trainingsprogramm*, Jürgen Ebert-Verlag, Leverkusen, 1992
- [Eidmann1996] Eidmann, G. ; Savelsberg, R. ; Blümmler, P. ; Blümich, B.: *The NMR-MOUSE – a mobile universal surface explorer*, Journal of Magnetic Resonance, Series A 122, 1996, pp. 104-109
- [Elias2001] Elias, H.-G.: *Makromoleküle – Physikalische Strukturen und Eigenschaften*, Bd. 2, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 2001
- [ETG2004] N. N.: *Vorwort zum ETG-Fachbericht 97*, VDE-Verlag, Berlin, 2004
- [ETG2005] Schröppel, W.: *VDE-Studie – Elektrische Energieversorgung 2020 – Perspektiven und Handlungsbedarf*, ETG Task Force Öffentlichkeitsarbeit, Frankfurt a. Main, 2005
- [EU2003] N. N.: *Background paper – undergrounding of electricity lines in europe*, Commission of the European Communities, Brüssel, 2003
- [Eymael2001] Eymael, R.: *Methoden und Anwendungen der Oberflächen-NMR: Die NMR-MOUSE*, Dissertation, RWTH Aachen, 2001
- [Fischer1974] Fischer, P. ; Röhl, P.: *Application of statistical methods to the analysis of electrical breakdown in plastics*, Siemens Forschungs- und Entwicklungsberichte, Bd. 3, Nr. 2, 1974, S. 125-129
- [Fornberg2004] Fornberg, B. ; Wright, G.: *Stable computations of multiquadric interpolants for all values of the shape parameter*, Computers and Mathematics with Applications, Vol. 48, 2004, pp. 853-867

- [Friebolin1999] Friebolin, H.: *Ein- und zweidimensionale NMR-Spektroskopie – Eine Einführung*, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 1999
- [Fröhlich1958] Fröhlich, H.: *Theory of dielectrics – dielectric constant and dielectric loss*, Clarendon Press, Oxford, 1958
- [Fu2000] Fu, M. ; Chen, G. ; Davies, A. E. ; Head, J. G.: *Space charge measurements in power cables using a modified PEA system*, IEE International Conference on Dielectric Materials, Measurements and Applications, Edinburgh, 2000, pp. 74-79
- [Gagnon1989] Gagnon, G. ; Péliou, S. ; Wertheimer, M. R.: *Oxidation dependence of breakdown strength of XLPE*, IEEE International Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Leesburg, 1989, pp. 241-244
- [GeneralCable2004] GeneralCable: *Ageing of XLPE compounds*, [online], <http://www.generalcable.com.au/technical/10.1.3.1.pdf>, WC 07.10.2004, 2004
- [Gentzkow1983] von Gentzkow, W. ; Rogler, W. ; Kleeberg, W.: *Maskierte Oxidationsinhibitoren für Kabel- und Leitungsisolierungen aus vernetztem Polyethylen*, Siemens Forschungs- und Entwicklungsberichte, Bd. 12, Nr. 3, 1983, S. 143-148
- [George1998] George, P. L. ; Borouchaki, H.: *Delaunay triangulation and meshing – application to finite elements*, Editions Hermes, Paris, 1998
- [Gidas1995] Gidas, B.: *Metropolis-type monte carlo simulation algorithms and simulated annealing*, in Snell, J. L. (Hrsg.): *Topics in contemporary probability and its applications*, CRC Press, Boca Raton, 1995, pp. 159-232
- [Gjaerde1997] Gjaerde, A. J.: *Multifactor ageing models – origin and similarities*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 13, No. 1, 1997, pp. 6-13
- [Gubanski1993] Gubanski, S. ; Bulinski, A. ; Bamji, S. S.: *Thermally stimulated current measurements on polymeric cable insulation – the diagnostic aspect*, IEEE International Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Pocono Manor, 1993, pp. 732-738
- [Gulmine2004] Gulmine, J. V. ; Akcelrud, L.: *Correlations between the processing variables and morphology of cross-linked polyethylene*, Journal of Applied Polymer Science, Vol. 94, 2004, pp. 222-230

- [Gulski2002] Gulski, E. ; Wester, F. J. ; Boone, W. ; van Schaik, N. ; Steennis, E. F. ; Groot, E. R. S. ; Pellis, L. ; Grotenhuis, B. J.: *Knowledge rules support for CBM of power cable circuits*, CIGRÉ-Session, Paris, 2002, Beitrag 15-104
- [Gulski2004] Gulski, E. ; Wester, F. J. ; Wester, P. ; Groot, E. R. S. ; van Doelang, J. W.: *Condition assessment of high voltage power cables*, CIGRÉ-Session, Paris, 2004, Beitrag D1-306
- [Günzler2002] Günzler, H. ; Gremlich, H.-U.: *IR spectroscopy – an introduction*, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 2002
- [Haridoss1990] Haridoss, S.: *Migration of vinyl acetate from semiconductive to insulation of power cables*, IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Toronto, 1990, pp. 281-285
- [Heinhold1987] Heinhold, L. (Hrsg.): *Kabel und Leitungen für Starkstrom – Teil 1*, Verlag Siemens AG, Berlin und München, 1987
- [Hendus1961] Hendus, H. ; Schnell, G.: *Röntgenographische und IR-spektroskopische Kristallinitätsbestimmung an Polyäthylen*, Kunststoffe, Bd. 51, Nr. 2, 1961, S. 69-74
- [Hersping1970] Hersping, A.: *Polarisations- und Depolarisationseffekte bei Isolierstoffen mit geringer Leitfähigkeit*, ETZ-A, Bd. 91, Nr. 5, 1970, S. 265-269
- [Hill1985] Hill, R. M. ; Dissado, L. A.: *Debye and non-Debye relaxation*, Journal of Physics C: Solid State Physics, Vol. 18, 1985, pp. 3829-3836
- [Holbøll2000] Holbøll, J. T. ; Henriksen, M. ; Hjerrild, J.: *Space charge build-up in XLPE cable with temperature gradient*, IEEE International Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Victoria, 2000, pp. 157-160
- [Hoon-Lee1996] Hoon-Lee, C. ; Eui-Lee, C. ; Hong-Han, J. ; Suh, K. S.: *Thermal degradation study of polyethylene using ¹H NMR*, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 35, 1996, pp. 2145-2148
- [Hoppe1994] Hoppe, H.: *Surface reconstruction from unorganized points*, Ph. D. thesis, University of Washington, Seattle, 1994
- [Hoppe1996] Hoppe, H.: *Progressive meshes*, SIGGRAPH – Annual Conference on Computer Graphics and interactive Techniques, New York, 1996, pp. 99-108

- [Hoschek1992] Hoschek, J. ; Lasser, D.: *Grundlagen der geometrischen Datenverarbeitung*, Teubner-Verlag, Stuttgart, 1992
- [Hvidsten1998] Hvidsten, S. ; Ildstad, E. ; Holmgren, B. ; Werelius, P.: *Correlation between AC breakdown strength and low frequency dielectric loss of water tree aged XLPE cables*, IEEE Transactions on Power Delivery, Vol. 13, No. 1, 1998, pp. 40-45
- [Iida1987] Iida, K. ; Nakamura, S. ; Ieda, M. ; Ito, K. ; Sawa, G.: *A dielectric study of oxidation in the amorphous and crystalline regions of low density polyethylene with antioxidant*, Polymer Journal, Vol. 19, No. 8, 1987, pp. 905-913
- [Ishibashi1998] Ishibashi, A. ; Kawai, T. ; Nakagawa, S. ; Muto, H. ; Katakai, S. ; Hirotsu, K. ; Nakatsuka, T.: *A study of treeing phenomena in the development of insulation for 500 kV XLPE cables*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 5, No. 5, 1998, pp. 695-706
- [Iske1994] Iske, A.: *Charakterisierung bedingt positiv definierter Funktionen für multivariate Interpolationsmethoden mit radialen Basisfunktionen*, Dissertation, GAU Göttingen, 1994
- [Iske2004] Iske, A.: *Multiresolution methods in scattered data modelling*, Lecture Notes in Computational Science and Engineering 37, Springer-Verlag, Berlin, 2004
- [Jones2005] Jones, J. P. ; Llewellyn, J. P. ; Lewis, T. J.: *The contribution of field-induced morphological change to the electrical aging and breakdown of polyethylene*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 12, No. 5, 2005, pp. 951-966
- [Jonscher1984] Jonscher, A. K. ; Lacoste, R.: *On a cumulative model of dielectric breakdown in solids*, IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 19, No. 6, 1984, pp. 567-577
- [Jonscher1990] Jonscher, A. K.: *The universal dielectric response – Part I*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 6, No. 2, 1990, pp. 16-22
- [Kahaner1989] Kahaner, D. ; Moler, C. ; Nash, S.: *Numerical methods and software*, Prentice Hall, Englewood Cliffs, 1989
- [Kahle1989] Kahle, M.: *Elektrische Isoliertechnik*, Springer-Verlag, Berlin, 1989
- [Kaminaga1997] Kaminaga, K. ; Ichihara, M. ; Jinno, M. ; Tanabe, T. ; Fukunaga, S. ; Kanaoka, M. ; Takehana, H.: *Development of 500 kV XLPE cables*, Electrical Engineering in Japan, Vol. 118, No. 1, 1997, pp. 28-40

- [Kao2004] Kao, K. C.: *Dielectric phenomena in solids – with emphasis on physical concepts of electronic processes*, Elsevier Academic Press, Amsterdam, 2004
- [Kärner1995] Kärner, H. C.: *Alterung-Degradation-Lebensdauer – Der Unterschied zwischen Theorie und Praxis*, ETG-Fachbericht 55, VDE-Verlag, Berlin, 1995, S. 5-14
- [Kaumanns2006] Kaumanns, J. ; Hansen, S. A.: *Moderne VPE-Kabel im 110-kV-Verteilnetz – neue Ansätze und innovative Techniken*, *Elektrizitätswirtschaft*, Jg. 105, H. 15-16, 2006, S. 48-53
- [Keithley1998] Keithley Instruments: *Low level measurements handbook – precision DC current, voltage and resistance measurements*, 5th Edition, 1998
- [Kirchner2005] Kirchner, M.: *Trends der Hochspannungstechnik – Berichte von der CIGRÉ 2004 (Teil 2); SC B1 – Isolierte Kabel*, *ETZ*, Nr. 1, 2005, S. 34-35
- [Kittel1986] Kittel, C.: *Introduction to solid state physics*, John Wiley & Sons-Verlag, New York (u. a.), 1986
- [Kliem1983] Kliem, H.: *Untersuchungen zur dielektrischen Relaxation im Zeitbereich in Al₂O₃*, Dissertation, RWTH Aachen, 1983
- [Kobbelt1998] Kobbelt, L. ; Campagna, S. ; Seidel, H.-P.: *A general framework for mesh decimation*, *Proceedings of the Graphics Interface*, Vancouver, 1998, pp. 43-50
- [Kober1994] Kober, H. ; Gier, D. ; Reitmeier, N.: *Langzeitprüfungen an VPE-Kabeln – Einfluss der Prüfparameter auf die Alterung*, *Elektrizitätswirtschaft*, Jg. 93, H. 26, 1994, S. 1654-1662
- [Kolb2003] Kolb, M. ; Stricker, F.: *Neue Stabilisierungssysteme für peroxidisch vernetztes Polyethylen*, *Kabelextrusion 2003 – Niederspannung, Automotive, Mittelspannung / Hochspannung, Messtechnik*, Bad Neuenahr, 2003, S. 157-182
- [Kolesov1976] Kolesov, S. N. ; Balaban, N. P. ; Putintsev, V. A. ; Kolesov, I. S.: *Einfluss der Molekularmassenverteilung auf die elektrischen Eigenschaften von Polyethylen*, Übersetzung aus: *Vysokomolekuljarnye Soedinenija*, Serija B, Bd. 18, Nr. 1, 1976, S. 5-7
- [König1993] König, D. ; Rao, Y. N.: *Teilentladungen in Betriebsmitteln der Energietechnik*, VDE-Verlag, Berlin, 1993

- [Krause1989] Krause, G. ; Möller, K ; Meurer, D.: *Dielectric phenomena in semi-crystalline polymers*, IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 24, No. 2, 1989, pp. 215-222
- [Krebs1999] Krebs, C. ; Avondet, M.-A. ; Leu, K. W.: *Langzeitverhalten von Thermoplasten*, Hanser-Verlag, München, 1999
- [Kremer2003] Kremer, F. ; Schönhals, A.: *Broadband dielectric spectroscopy*, Springer-Verlag, Berlin, 2003
- [Krohne1978] Krohne, R.: *Über die Ausbildung von Raumladungen in Polyethylen bei hohen Gleich-, Wechsel- und Mischbeanspruchungen*, Dissertation, Universität Hannover, 1978
- [Krollmann2000] Krollmann, N.: *Wärmeleitfähigkeit von Kunststoffen*, in Ehrenstein, G. W. ; Pongratz, S. (Hrsg.): *Thermische Einsatzgrenzen von Kunststoffen in Verarbeitung und Anwendung*, Springer-VDI-Verlag, Düsseldorf, 2000, S. 35-46
- [Laurent2003] Laurent, C. ; Campus, A. et al.: *Evaluation and modelling of thermo-electric ageing of XLPE insulated power cables – the ARTEMIS outcome*, International Conference on Insulated Power Cables, Versailles, 2003, Beitrag B 7.5
- [Laurent2005] Laurent, C. ; Montanari, G. C.: *Solid dielectrics – a perspective view*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 12, No. 5, 2005, pp. 855-856
- [Lazár1990] Lazár, M. ; Rado, R. ; Rychlý, J.: *Crosslinking of polyolefins*, Advances in Polymer Science, Vol. 95, Springer-Verlag, Berlin, 1990, pp. 149-197
- [Lazár2004] Lazár, M. ; Kleinová, A. ; Fiedlerová, A. ; Janigová, I. ; Borsig, E.: *Role of minority structures and mechanism of peroxide crosslinking of polyethylene*, Journal of Polymer Science: Part A: Polymer Chemistry, Vol. 42, 2004, pp. 675-688
- [Leibfried2005] Leibfried, T. ; Stach, M.: *Dielektrische Analyseverfahren – Algorithmen zur Überführung der Ergebnisse eines Verfahrens in andere Verfahren*, ETG-Fachbericht 99, VDE-Verlag, Berlin, 2005, S. 159-164
- [Lemke2005] Lemke, E. ; Strehl, T.: *Progress in PD monitoring for insulation condition assessment of HV assets*, International Symposium on Electrical Insulating Materials, Kitakyushu, 2005, Beitrag B4-3

- [Lewin2005] Lewin, P. L.: *Continuous online condition monitoring of HV cable systems*, UHV Net Colloquium on Condition Monitoring and Ageing of High Voltage Plant/Equipment, Cardiff, 2005, pp. 1-5
- [Lewis2001] Lewis, T. J.: *The physico chemical origins and nature of space charge in insulating solids under electrical stress*, IEEE International Conference on Solid Dielectrics, Eindhoven, 2001, pp. 223-227
- [Linsen2001] Linsen, L.: *Oberflächenrepräsentation durch Punktwolken*, Dissertation, Universität Karlsruhe, 2001
- [Lodha1997] Lodha, S. K. ; Franke, R.: *Scattered data techniques for surfaces*, Scientific Visualization Conference, Dagstuhl, 1997, pp. 182-222
- [Markey2000] Markey, L. ; Stevens, G. C. ; Dissado, L. A. ; Montanari, G. C.: *Multi-stress electrical and thermal ageing of HV extruded polymeric cables: mechanisms and methods*, IEE International Conference on Dielectric Materials, Measurements and Applications, Edinburgh, 2000, pp. 413-418
- [Marsacq1995] Marsacq, D. ; Hourquebie, P. ; Olmedo, L. ; Janah, H.: *Effects of structural parameters of polyethylene on space charge properties*, International Conference on Space Charge in Solid Dielectrics, Antibes Juan Les Pins, Vol. 275, 1995, pp. 432-438
- [Mazzanti1996] Mazzanti, G. ; Montanari, G. C. ; Simoni, L.: *Study of the synergistic effect of electrical and thermal stresses on insulation life*, IEEE International Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, San Francisco, 1996, pp. 684-687
- [Mazzanti1997] Mazzanti, G. ; Montanari, G. C. ; Simoni, L.: *Insulation characterization in multistress conditions by accelerated life tests – an application to XLPE and EPR for high voltage cables*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 13, No. 6, 1997, pp. 24-34
- [Meunier2000] Meunier, M. ; Quirke, N.: *Molecular modelling of electron trapping in polymer insulators*, Journal of Chemical Physics, Vol. 113, No. 1, 2000, pp. 369-376
- [Meunier2001] Meunier, M. ; Quirke, N. ; Aslanides, A.: *Molecular modelling of electron traps in polymer insulators – chemical defects and impurities*, Journal of Chemical Physics, Vol. 115, No. 6, 2001, pp. 2876-2881
- [Mogensen1995] Mogensen, O. E.: *Positron annihilation in chemistry*, Springer Series in Chemical Physics, Vol. 58, Springer-Verlag, Berlin, 1995

- [Moler2004] Moler, C.: *Numerical computing with MATLAB*, Society for Industrial and Applied Mathematics, Philadelphia, 2004
- [Montanari2005] Montanari, G. C. ; Morshuis, P. H. F.: *Space charge phenomenology in polymeric insulating materials*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 12, No. 4, 2005, pp. 754-767
- [Montefusco1989] Montefusco, L. B. ; Casciola, G.: *Algorithm 677 – C^1 surface interpolation*, ACM Transactions on Mathematical Software, Vol. 15, No. 4, 1989, pp. 365-374
- [Münch1993] von Münch, W.: *Werkstoffe der Elektrotechnik*, Teubner-Verlag, Stuttgart, 1993
- [Németh2003] Németh, E.: *Triboelektrische Aufladung von Kunststoffen*, Dissertation TU Bergakademie Freiberg, 2003
- [Newe1980] Newe, R.: *Untersuchungen zum Bruchverhalten des nichtorientierten isotaktischen Polypropylens*, Dissertation, TH Leuna-Merseburg, 1980
- [Nexans2007] N. N.: *Nexans wins 35 million Euro high voltage underground power cable contract for Shanghai*, Nexans Press Release, Paris, 19. März 2007
- [Nielson1993] Nielson, G. M.: *Modeling and visualizing volumetric and surface-on-surface data*, in Hagen, H. ; Müller, H. W. ; Nielson, G. M. (Hrsg.): *Focus on scientific visualization*, Springer-Verlag, Berlin, 1993, pp. 191-242
- [Nilsson1998] Nilsson, U. H. ; Dammert, R. C. ; Campus, A. ; Sneck, A. ; Jakosuo-Jansson, H.: *Morphology of polyethylene for power cable insulation – effects of antioxidant and crosslinking*, IEEE International Conference on Solid Dielectrics, Västerås, 1998, pp. 365-367
- [Nitsche1962] Nitsche, R. ; Wolf, K. A.: *Kunststoffe – Struktur und physikalisches Verhalten der Kunststoffe*, Bd. 1, Springer-Verlag, Berlin, 1962
- [Notingher2001] Notingher, P. ; Toureille, A. ; Santana, J. ; Martinotto, L. ; Albertini, M.: *Study of space charge accumulation in polyolefins submitted to AC stress*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 8, No. 6, 2001, pp. 972-984
- [Olshausen1979] von Olshausen, R.: *Durchschlagprozesse in Hochpolymeren und ihr Zusammenhang mit den Leitungsmechanismen bei hohen Feldstärken*, Habilitationsschrift, Universität Hannover, 1979

- [Otto1997] Otto, M.: *Chemometrie – Statistik und Computereinsatz in der Analytik*, Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, 1997
- [Parpal1993] Parpal, J.-L. ; David, E. ; Séguin, J.-N. ; Crine, J.-P.: *Microphysical characterization of XLPE cable insulation after electrical aging*, International Conference on Power Cables and Accessoires 10 kV-500 kV, London, 1993, pp. 160-164
- [Parpal1997] Parpal, J.-L. ; Crine, J.-P. ; Dang, C.: *Electrical aging of extruded dielectric cables – a physical model*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, No. 2, 1997, pp. 197-209
- [Partridge1965] Partridge, R. H.: *Electron traps in polyethylene*, Journal of Polymer Science: Part A, Vol. 3, 1965, pp. 2817-2825
- [Patsch1990] Patsch, R.: *Space charge phenomena in polyethylene at high electric fields*, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 23, No. 12, 1990, pp. 1497-1505
- [Patsch2002] Patsch, R. ; Kindesberger, J. ; König, D.: *Alterung von Betriebsmitteln – ein Überblick*, ETG-Fachbericht 87, VDE-Verlag, Berlin, 2002, S. 23-30
- [Peschke1998] Peschke, E. ; von Olshausen, R.: *Kabelanlagen für Hoch- und Höchstspannung – Entwicklung, Herstellung, Prüfung, Montage und Betrieb von Kabeln und deren Garnituren*, Publicis MCD-Verlag, Erlangen, 1998
- [Phillips1983] Phillips, J. P.: *Morphology and molecular structure of polymers and their dielectric behaviour*, in Bartnikas, R. ; Eichhorn, R. M. (Hrsg.): *Engineering dielectrics, Vol. II A, Electrical properties of solid insulating materials: molecular structure and electrical behaviour*, Philadelphia, ASTM STP 783, 1983, pp. 119-238
- [Piegl1995] Piegl, L. ; Tiller, W.: *The NURBS book*, Springer-Verlag, Berlin, 1995
- [Pietsch1992] Pietsch, R.-D.: *Untersuchungen zur Bedeutung der Elektrolumineszenz für die dielektrische Alterung von Polyethylen*, Dissertation, RWTH Aachen, 1992
- [Platbrood2002] Platbrood, G. ; Delreé, X. ; Geerts, G. ; Becker, J.: *Evacuation of space charges trapped in the XLPE insulation and relaxation of its mechanical stresses in function of the temperature in order to increase its lifetime in service*, CIGRÉ-Session, Paris, 2002, Beitrag 15-307

- [Pommerenke2000] Pommerenke, D. ; Masterson, K.: *A novel concept for monitoring partial discharge on EHV-cable system accessories using no active components at the accessories*, IEE International Conference on Dielectric Materials, Measurements and Applications, Edinburgh, 2000, pp. 145-149
- [Porzel1996] Porzel, R. ; Neudert, E. ; Sturm, M.: *Diagnostik in der elektrischen Energietechnik*, Expert-Verlag, Renningen-Malmsheim, 1996
- [Powell1992] Powell, M. J. D.: *The theory of radial basis function approximation in 1990*, in Leight, W. A. (Hrsg.): *Advances in numerical analysis II – wavelets, subdivision, and radial functions*, Oxford University Press, Oxford, 1992, pp. 105-210
- [Programma2002] Programma Products: *Insulation diagnostic system IDA 200™ – user manual*, SW Version R01D, Programma Electric AB, 2002
- [Pultrum2004] Pultrum, E. ; Verhoeven, S. A. M.: *Testing of extruded cables – experience in type testing, PQ testing and test after installation; what do we learn from it?*, CIGRÉ-Session, Paris, 2004, Beitrag B1-104
- [Pump1979] Pump, W. ; Woltjes, D.: *Die Derivativspektroskopie in der Kunststoffanalytik am Beispiel von LDPE*, Kunststoffe, Bd. 69, Nr. 6, 1979, S. 317-320
- [Renfrew1960] Renfrew, A. ; Morgan, P.: *Polythene – the technology and uses of ethylene polymers*, Iliffe & Sons Press, London, 1960
- [Renka1984] Renka, R. J.: *Algorithm 624 – Triangulation and interpolation at arbitrarily distributed points in the plane*, ACM Transactions on Mathematical Software, Vol. 10, No. 4, 1984, pp. 440-442
- [Reuter2004] Reuter, M. ; Gockenbach, E. ; Borsi, H. ; Kremer, K. ; Blümich, B.: *Synergic phenomena of multistress aged XLPE-cable insulation investigated by the evaluation of depolarisation current measurements and nuclear magnetic resonance*, IEEE International Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Boulder, 2004, pp. 267-270
- [Rippa1999] Rippa, S.: *An algorithm for selecting a good value for the parameter c in radial basis function interpolation*, Advances in Computational Mathematics, Vol. 11, 1999, pp. 193-210
- [Robertson1995] Robertson, C. ; Fournier, D. ; Lamarre, L.: *Influence of aging over the morphology of XLPE*, International Conference on Insulated Power Cables, Versailles, 1995, Beitrag A 8.2

- [Röhl1982] Röhl, P.: *Hoppingleitung und zeitlich veränderliche Raumladung in Polyethylen*, Dissertation, TU München, 1982
- [Römpp2005] N. N.: *RÖMPP online, Version 2.7*, [online], <http://www.roempp.com/prod/index1.html>, 31. Mai 2005
- [Roussos2005] Roussos, G. ; Baxter, B. J. C.: *Rapid evaluation of radial basis functions*, Journal of Computational and Applied Mathematics, Vol. 180, 2005, pp. 51-70
- [Rüter2006] Rüter, F.: *General report for group B1 (insulated cables)*, CIGRÉ-Session, Paris, 2006
- [Sadler2004] Sadler, S. ; Sutton, S. ; Memmer, H. ; Kaumanns, J.: *1600 MVA electrical power transmission with an EHV XLPE cable system in the underground of London*, CIGRÉ-Session, Paris, 2004, Beitrag B1-108
- [Saetre2004] Saetre, R.: *Comments on quantitative analysis of polyethylene blends by fourier transform infrared spectroscopy*, Applied Spectroscopy, Vol. 58, No. 6, 2004, pp. 754-755
- [Sawyer1996] Sawyer, L. C. ; Grubb, D. T.: *Polymer microscopy*, Chapman & Hall-Verlag, London, 1996
- [Sayers2000] Sayers, P. W. ; Lewis, T. J. ; Llewellyn, J. P. ; Griffiths, C. L.: *Investigation of the structural changes in LDPE and XLPE induced by high electrical stress*, IEE International Conference on Dielectric Materials, Measurements and Applications, Edinburgh, 2000, pp. 403-407
- [Schaback1995] Schaback, R.: *Creating surfaces from scattered data using radial basis functions*, in Dæhlen, M. ; Lyche, T. ; Schumaker, L. L. (Hrsg.): *Mathematical methods for curves and surfaces*, Vanderbilt University Press, Nashville, 1995, pp. 477-496
- [Scharff1990] Scharff, C. ; Eberhardt, M.: *Zum Verhalten von Vernetzerspaltprodukten in VPE-Kabelisolierungen bei Betriebstemperatur*, Elektrik, Bd. 44, 1990, S. 133
- [Schaumburg1994] Schaumburg, G.: *Overview – modern measurement techniques in broadband dielectric spectroscopy*, Dielectric Newsletter of Novocontrol, 1994, Märzausgabe
- [Schaumburg1997] Schaumburg, H.: *Polymere – Werkstoffe und Bauelemente der Elektrotechnik*, Teubner-Verlag, Stuttgart, 1997

- [Schichler1996] Schichler, U.: *Erfassung von Teilentladungen an polymerisolierten Kabeln bei der Vor-Ort-Prüfung und im Netzbetrieb*, Dissertation, Universität Hannover, 1996
- [Schiller1996] Schiller, G.: *Das Durchschlagverhalten von vernetztem Polyethylen (VPE) bei unterschiedlichen Spannungsformen und Vorbeanspruchungen*, Dissertation, Universität Hannover, 1996
- [Schneider1996] Schneider, P.: *Raumladungsphänomene in VPE-Kabelisolierungen bei elektrischer Hochfeldbeanspruchung*, Dissertation, RWTH Aachen, 1996
- [Schroth2007] Schroth, R.: *Electrical tests and measurements in the life cycle of cables and high voltage cable systems*, Highvolt Kolloquium „Tests and measurements in the life cycle of high-voltage equipment“, Dresden, 2007, Beitrag 3.1
- [Schumann2004] Schumann, H.: *Konzepte und Methoden der wissenschaftlichen Visualisierung*, Kartographische Bausteine, TU Dresden, Bd. 26, 2004, S. 20-28
- [Schütze1998] Schütze, T.: *Diskrete Quadratmittelapproximation durch Splines mit freien Knoten*, Dissertation, TU Dresden, 1998
- [Sheu1989] Sheu, K. ; Huang, S. J. ; Johnson, J. F.: *Effect of crosslinking density on the diffusion of antioxidant in XLPE matrices*, Polymer Engineering and Science, Vol. 29, No. 1, 1989, pp. 77-81
- [Shimizu2000] Shimizu, N. ; Shibata, Y. ; Ito, K. ; Imai, K. ; Nawata, M.: *Electrical tree at high temperatures in XLPE and effect of oxygen*, IEEE International Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Victoria, 2000, pp. 329-332
- [Smedberg2004a] Smedberg, A. ; Gustafsson, B. ; Hjertberg, T.: *What is cross-linked polyethylene?*, IEEE International Conference on Solid Dielectrics, Toulouse, 2004, pp. 415-418
- [Smedberg2004b] Smedberg, A. ; Hjertberg, T. ; Gustafsson, B.: *The role of entanglements in network formation in unsaturated low density polyethylene*, Polymer, Vol. 45, 2004, pp. 4867-4875
- [Spiess1999] Spiess, H. W.: *Dynamische Phänomene in Festkörpern und Polymeren*, Nordrhein-Westfälische Akademie der Wissenschaften: Natur-, Ingenieur- und Wirtschaftswissenschaften, Vorträge-Nr. 439, Westdeutscher-Verlag, Wiesbaden, 1999

- [Steennis2006] Steennis, E. F. ; van der Wielen, P.: *Permanentüberwachung von Kabeln*, Elektrizitätswirtschaft, Jg. 105, H. 6, 2006, S. 61-63
- [Steingraber1992] Steingraber, M.: *Der Einfluss von Feuchte auf das Leitungsverhalten von watertree-retardierenden VPE-Compounds*, Dissertation, Universität Hannover, 1992
- [Storm1986] Storm, R.: *Wahrscheinlichkeitsrechnung, mathematische Statistik und statistische Qualitätskontrolle*, VEB-Fachbuchverlag, Leipzig, 1986
- [Suh1992] Suh, K. S. ; Tanaka, J. ; Damon, D.: *What is TSC?*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 8, No. 6, 1992, pp. 13-20
- [Takahashi1985] Takahashi, T. ; Ohtsuka, H. ; Takehana, H. ; Niwa, T.: *Study to improve the dielectric breakdown strength of extruded dielectric cables*, IEEE Transaction on Power Apparatus and Systems, Vol. 104, No. 8, 1985, pp. 1945-1950
- [Theisel2001] Theisel, H.: *CAGD and scientific visualization*, Habilitationsschrift, Universität Rostock, 2001
- [TietzeSchenk2002] Tietze, U. ; Schenk, C.: *Halbleiterschaltungstechnik*, Springer-Verlag, Berlin, 2002
- [Tourelle1998] Tourelle, A. ; Notingher, P. ; Vella, N. ; Malrieu, S. ; Castellon, J. ; Agnel, S.: *The thermal step technique – an advanced method for studying the properties and testing the quality of polymers*, Polymer International, Vol. 46, No. 2, 1998, pp. 81-92
- [Turnhout1980] van Turnhout, J.: *Thermally stimulated discharge of electrets*, in Sessler, G. M. (Hrsg.): *Topics in applied physics – electrets*, Vol. 33, Springer-Verlag, Berlin, 1980, pp. 81-215
- [Vanderschueren1979] Vanderschueren, J. ; Gasiot, J.: *Field induced thermally stimulated currents*, in Bräunlich, P. (Hrsg.): *Topics in applied physics – Thermally stimulated relaxation in solids*, Vol. 37, Springer-Verlag, Berlin, 1979, pp. 135-223
- [Vieweg1969] Vieweg, R. ; Schley, A. ; Schwarz, A.: *Kunststoff-Handbuch – Polyolefine*, Bd. 4, Hanser-Verlag, München, 1969
- [Wagner1913] Wagner, K. W.: *Zur Theorie der unvollkommenen Dielektrika*, Annalen der Physik, Bd. 40, Nr. 5, 1913, S. 817-855

- [Wagner1977] Wagner, H. ; Wartusch, J.: *About the significance of peroxide decomposition products in XLPE cable insulation*, IEEE Transaction on Electrical Insulation, Vol. 12, No. 6, 1977, pp. 395-401
- [Watson1981] Watson, D. F.: *Computing the n-dimensional Delaunay tessellation with applications to Voronoi polytopes*, The Computer Journal, Vol. 24, No. 2, 1981, pp. 167-172
- [Weck1989] Weck, K.-H.: *Stufentest zur Ermittlung des Isolationszustands betrieblich vorbeanspruchter PE- und VPE-Mittelspannungskabel*, Elektrizitätswirtschaft, Jg. 88, H. 8, 1989, S. 470-473
- [Weibull1951] Weibull, W.: *A statistical distribution function of wide applicability*, Journal of Applied Mechanics, Vol. 18, 1951, pp. 293-297
- [Weigand1997] Weigand, F. ; Spiess, H. W. ; Blümich, B. ; Salge, G. ; Möller, K.: *Nuclear magnetic resonance imaging of electrical trees in PE*, IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 4, No. 3, 1997, pp. 280-285
- [Weißenberg1999] Weißenberg, W. ; von Olshausen, R. ; Kalkner, W.: *Die elektrische Zeitstandfestigkeit von vernetztem Polyethylen*, in Mair, H. J. (Hrsg.): *Kunststoffe in der Kabeltechnik – Entwicklung, Prüfung, Erfahrungen, Tendenzen*, Kontakt & Studium, Bd. 111, Expert-Verlag, Renningen-Malmsheim, 1999, S. 146-173
- [Wendland1996] Wendland, H.: *Konstruktion und Untersuchung radialer Basisfunktionen mit kompaktem Träger*, Dissertation, GAU Göttingen, 1996
- [Wendland2006] Wendland, H.: *Computational aspects of radial basis function approximation*, in Jetter, K. ; Buhmann, M. D. ; Haussmann, W. ; Schaback, R. ; Stöckler, J. (Hrsg.): *Topics in multivariate approximation and interpolation*, Elsevier Academic Press, Amsterdam, 2006, pp. 231-256
- [Wintle1983] Wintle, H. J.: *Conduction processes in polymers*, in Bartnikas, R. ; Eichhorn, R. M. (Hrsg.): *Engineering dielectrics, Vol. II A, Electrical properties of solid insulating materials: molecular structure and electrical behaviour*, Philadelphia, ASTM STP 783, 1983, pp. 239-354
- [Wolter1987] Wolter, K. D. ; Johnson, J. F. ; Tanaka, J.: *Polymer degradation and its measurements*, in Bartnikas, R. ; Eichhorn, R. M. (Hrsg.): *Engineering dielectrics, Vol. II B, Electrical properties of solid insulating materials: measurement techniques*, Philadelphia, ASTM STP 926, 1987, pp. 313-439

- [Zaengl2003a] Zaengl, W. S.: *Dielectric spectroscopy in time and frequency domain for HV power equipment, Part I: Theoretical considerations*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 19, No. 5, 2003, pp. 5-19
- [Zaengl2003b] Zaengl, W. S.: *Applications of dielectric spectroscopy in time and frequency domain for HV power equipment*, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 19, No. 6, 2003, pp. 9-22
- [Zweifel1998] Zweifel, H.: *Stabilization of polymeric materials*, Springer-Verlag, Berlin, 1998

Zitierte Normen

- ASTM D3124 *Standard test method for vinylidene unsaturation in polyethylene by infrared spectrophotometry*, 04/2003
- ASTM D5576 *Standard practice for determination of structural features on polyolefins and polyolefin copolymers by infrared spectrophotometry (FT-IR)*, 06/2000
- ASTM D792 *Standard test methods for density and specific gravity (relative density) of plastics by displacement*, 12/2000
- IEC 60505 *Evaluation and qualification of electrical insulation systems*, 12/1999
- IEC 60840 *Power cables with extruded insulation and their accessories for rated voltages above 30 kV up to 150 kV – Test methods and requirements*, 04/2004
- IEC 62067 *Power cables with extruded insulation and their accessories for rated voltages above 150 kV up to 500 kV – Test methods and requirements*, 10/2001
- VDE 0276/605-A1 *Starkstromkabel – Ergänzende Prüfverfahren*, 12/1996
- VDE 0276/620 *Starkstromkabel – Energieverteilungskabel mit extrudierter Isolierung für Nennspannungen U_0/U 3,6/6 kV bis 20,8/36 kV*, 12/1996
- VDE 0278/628 *Starkstromkabel-Garnituren mit Nennspannungen U bis 30 kV – Prüfverfahren*, 06/2002
- VDE 0303/21 *Elektrische Durchschlagfestigkeit von isolierenden Werkstoffen*, 03/1999

- VDE 0303/30 *Prüfverfahren für Elektroisolierstoffe – Spezifischer Durchgangswiderstand und spezifischer Oberflächenwiderstand von festen, elektrisch isolierenden Werkstoffen, 12/1993*
- VDE 0308/1 *Standardbedingungen für die Anwendung vor und während der Prüfung von festen Elektroisolierstoffen, 09/1995*
- VDE 0472/505 *Prüfung an Kabeln und isolierten Leitungen – Verlustfaktor, dielektrische Verlustzahl und Ableitung, 04/1983*

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name: Mark Reuter
Geburtsdatum: 12.10.1972
Geburtsort: Langenhagen
Familienstand: ledig

Schulausbildung

1979 – 1983 Grundschole Neustadt
1983 – 1985 Orientierungsstufe Neustadt
1985 – 1992 Gymnasium Neustadt
06/1992 allgemeine Hochschulreife (Abitur)

Zivildienst

1992 – 1993 Schwerstbehindertenbetreuung, Ambulante Hilfsdienste Hannover

Akademische Ausbildung

1993 – 2000 Elektrotechnik an der Universität Hannover,
Studienschwerpunkt: Elektrische Energieversorgung
08/2000 Hochschulgrad Diplom-Ingenieur

Praktische Tätigkeiten

1993 Maschinenfabrik H. Schlüter GmbH u. Co. KG, Neustadt
1995 Teubner Industrie-Elektronik, Neustadt
1997 HASTRA AG, Hannover
1999 Wissenschaftliche Hilfskraft, Institut für Energieversorgung und Hochspannungstechnik, Fachgebiet Hochspannungstechnik (Schering-Institut), Universität Hannover

Berufstätigkeiten

11/2000 – 10/2006 Wissenschaftlicher Mitarbeiter, Institut für Energieversorgung und Hochspannungstechnik, Fachgebiet Hochspannungstechnik (Schering-Institut), Universität Hannover
seit 11/2006 Service-Ingenieur im Bereich „High-voltage – Technical Service and GIS-Diagnostics“, Siemens AG, Berlin