

宇宙機用高分子絶縁材料におけるキャリア移動度測定方法の考案

武田 岳大, 朝倉 直紀, 三宅 弘晃, 田中 康寛 (東京都市大学)

宇宙機は軌道上の放射線による帯電・放電現象により運用異常を起こす可能性があり、設計段階から電気絶縁物性を考慮した材料設計が重要となる。移動度は絶縁材料の電気伝導や絶縁破壊機構を解明するための最も重要な物性値の一つで、本研究では移動度測定方法の考案を目的としている。本報告では特に、パルス静電応力法を用いたフッ素系絶縁材料のキャリア移動度測定法を提案した。測定の結果、ETFEの移動度を $10^{-12} [\text{m}^2\text{V}^{-1}\text{S}^{-1}]$ オーダーと算出した。

1. はじめに

近年、通信、気象、GNSS などの多数の宇宙機が軌道上で運用されている。それらの宇宙機にはフッ素系の材料がワイヤーハーネスの被覆材や太陽光反射などの熱制御材として利用されている。ヴァン・アレン帯で運用されることで、ヴァン・アレン帯内に捕獲された高エネルギー荷電粒子により帯電し、過度の帯電によって放電が発生する。この帯電・放電現象により運用異常を引き起こすことが報告されている。設計段階における電気絶縁物性を考慮した材料設計が重要となる。

電気絶縁特性を評価する物性値に移動度があり、絶縁材料の電気伝導や絶縁破壊機構を解明するための最も重要な物性値の一つである。移動度測定に寄与する絶縁材料中のキャリア密度は非常に小さく、測定が難しい。本研究ではパルス静電応力 (pulsed electroacoustic : PEA) 法を用いたキャリア移動度測定システムの構築と測定を試みている。

これまでに空間電荷分布や表面電位を計測する方法では高分子絶縁材料のキャリア移動度を $10^{-14} [\text{m}^2\text{V}^{-1}\text{S}^{-1}]$ オーダーと算出されているが、宇宙機で用いられるフッ素系高分子材料についてはさらに $10^2 [\text{m}^2\text{V}^{-1}\text{S}^{-1}]$ オーダー高い値であると推定されている。本報告では測定時間の分解能をさらに小さくすることで $10^{-12} [\text{m}^2\text{V}^{-1}\text{S}^{-1}]$ オーダーのキャリア移動度を算出できる方法を考案することを目的とした。考案した方法として、単極性矩形波電圧 500 Hz 印加による ETFE 内のキャリア移動度導出を試みたので報告する。

2. 測定装置及び測定方法

2-1. パルス静電応力法

Fig.1 にパルス静電応力法(Pulse Electro-Acoustic Method : PEA 法)の概略図を示す。測定試料を高電圧電極と接地電極で挟み、高電圧印加中及び短絡中にパルス電圧を印加する。これにより、試料内にパルス電界が発生することで、試料内部に蓄積していた電荷は微小変位して圧力波が発生する。この生成された圧力波は測定試料内部から圧電素子の方向に伝搬し、圧電素子によって電気信号に変換される。電気信号は電荷量と印加したパルス

電界に比例し、音波の伝搬時間差が電荷分布に対応している事から、空間電荷蓄積分布を知ることができる。

本空間電荷測定装置の圧電素子には高温用 PVDF を用いており、室温から 80°C までの温度環境下で測定可能である^[1]。Fig.2 に測定装置の概略図を示す。この測定装置を用いて、空間電荷分布を観測し、キャリア移動度の算出を行った。

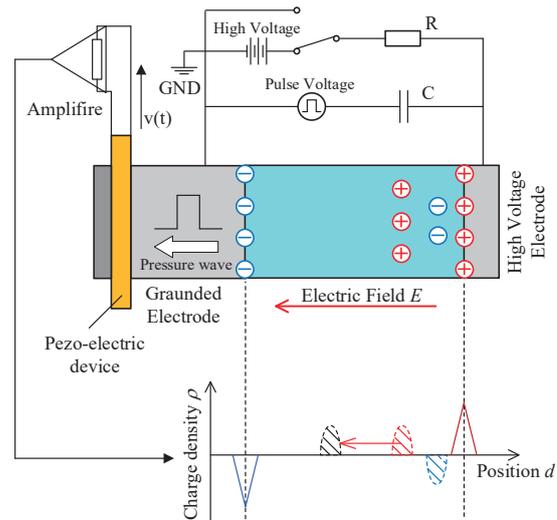


Fig.1 Principle of the pulsed electroacoustic method

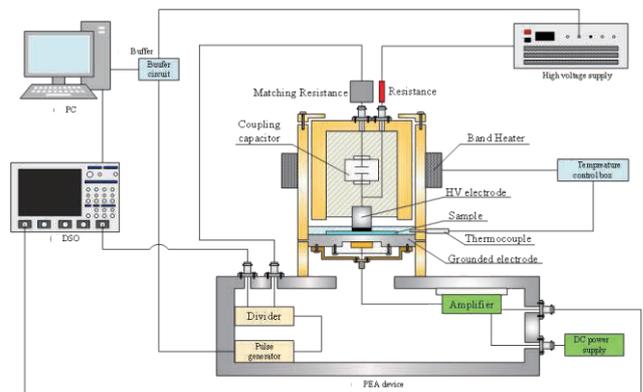


Fig. 2 Schematic diagram of PEA system

2-2. キャリアの励起

Fig.3 に試料に行う処理の概略図を示す。本測定方法では、PEA 法を用いた測定装置に試料を挟み、電圧を印加する。電圧を印加することで発生した電界で、試料内に存在するキャリアを走行させる。この時試料内で走行するキャリアは、何らかの励起方法を用いてあらかじめ生成する必要がある。そこで本測定方法では試料に電子線照射による励起を行い、電子正孔対を生成する。電子線照射は電子の飛程が表面近傍に留まるよう加速エネルギーを調整する。電子線の通過領域には電子正孔対が生成され、電界を印加することで電子線照射領域から未照射領域へ電子正孔対の正孔キャリアが未照射領域へと注入され、未照射領域を移動する電荷の移動距離・速度からキャリア移動度を算出する。

電子線照射には、当研究室で構築した電子線照射用真空チャンバーを用いる。Fig.4 に電子線照射用真空チャンバーの概略図を示す。真空チャンバー内を真空排気する場合には、大気圧から 10^{-2} Pa まではロータリーポンプ、 10^{-2} Pa 以下ではターボ分子ポンプを用いる。真空チャンバー内の真空度は約 10^{-5} Pa まで到達可能となっている。電子線を照射する際には、真空チャンバー内の陰極に陰極加熱電源を用いて電流 I_f を流すことで加熱し、同時に、電子加速用高電圧 V_0 を陰極に印加すると、陰極から接地した陽極に向かって電子が照射される。このとき、フィラメントと接地電極間の電位差が電子の加速電圧 V となり、電子線の電流が I となる。これらのシステムを用いることで、本装置では加速エネルギー 100 keV までの電子線照射が可能となっている。

本報告では ETFE の表面 $23 \mu\text{m}$ に留まるよう加速エネルギー 50 keV とした。飛程の計算には Katz・Penfold の式を用いた。また、照射電流密度を 5 nA/cm^2 、照射時間を 5 min とし電子線照射を行った。

2-3. 注入電荷抑制層

電子線照射を行った試料の表面は、電荷の注入障壁が低下する。試料に高電圧印加を行うと、電子線照射面と高電圧印加電極の界面から電荷の注入が起こる。そこで、電子線照射を行った試料と高電圧電極の間に未処理の薄膜同種試料を積層し Fig.3 に示す注入電荷抑制層とした²⁾。

2-4. 電圧印加条件

通常の PEA 法を用いる空間電荷分布測定では波形の取得間隔を秒オーダーであるが、本報告では、さらなる高時間分解能化を実現するため、 10^{-3} s オーダーで測定を行うことができるように電圧印加条件を制御した。Fig.5 に印加電圧波形の概略図を示す。同図において赤の実線は単極性矩形波高電圧波形 (周波数 500 Hz, デューティ比 50%) を、青い波形はパルス電圧 (時間幅 5 ns, 繰返し周波数 1 kHz, $v_p = 200 \text{ V}$) の印加タイミングをそれぞれ示している。単極性矩形波電圧の電圧印加中と短絡中においてそれぞれ空間電荷分布を取得できるよう、パルス電圧と矩形波高電圧の周期

を同期し、パルス電圧単発を印加した際の空間電荷波形を加算平均処理を施さずに連続的に取得後、1 ms 毎の各測定を分離し、矩形波の正電圧印加中と接地時の測定と個別に集計する事で、印加中及び短絡時の空間電荷波形をそれぞれ得ることが出来る。

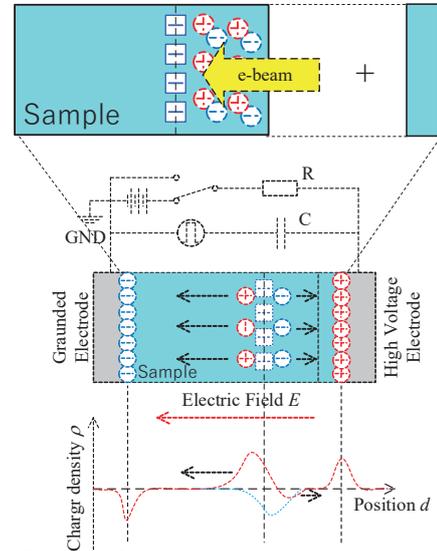


Fig.3 Schematic diagram of measurement procedure of electron - hole pair generated in the bulk of e-beam irradiated sample

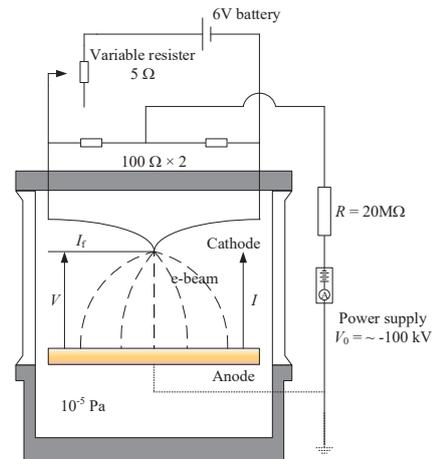


Fig.4 Schematic diagram of the vacuum chamber with electron gun

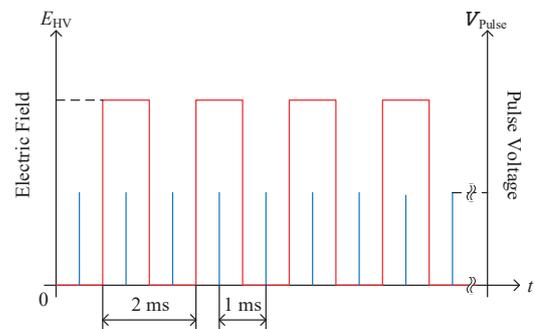


Fig.5 Synchronization timing between positive unipolar square wave voltage and pulse voltage

2-5. 空間電荷分布波形の取得波形処理

単極性矩形波電圧の電圧印加時および短絡時に取得した空間電荷分布波形は、印加時と短絡時それぞれ 400 波形ずつ平均化を行い、1つの波形として処理を行う。

印加時の空間電荷分布波形を積分する事得られた電界分布より、実際にキャリア電荷に印加される電界値を用いて移動度の算出を行う。本測定法で得られる計測時間が短時間となる為、計測電荷量は通常の直流電圧印加時での測定結果と比較しごく少量である。電荷の移動距離を明確にする為、Fig.6 に示す様に一定の測定時間毎の空間電荷分布の差分波形取ること、電荷移動量を明確化した。例えば、100 周期後の波形から 50 周期前の波形を引くことで差分波形を算出することができる。差分波形において、移動した電荷はパケット状に示され、電荷の位置としてその重心位置を算出する。算出した重心位置を経過時間ごとに比較することで電荷の移動速度を得る。しかし、実際の測定では重心位置の変化を平滑に得ることはできないため、得られた重心位置のプロットに近似した直線の傾きからその電荷速度 v を得る。

2-6. 移動度算出

単極性矩形波電圧の電圧印加中及び短絡中の空間電荷分布から得た、経時変化・厚さ方向ごとの電界値 E と電荷重心位置の移動速度 v と式 (2) を用いて経過時間ごとのキャリア移動度 μ を算出する。

$$\mu = \frac{v}{E} \tag{2}$$

3. 測定試料、電子線照射条件、及び空間電荷測定条件

測定試料には公称試料厚 100 μm の ETFE フィルムを、また高電圧電極からの電荷注入防止層として公称試料厚さ 25 μm の ETFE フィルムを用いた^[2]。ETFE に電子線 (50 keV, 5 nA/cm², 5 min) 照射を 10⁻⁵ Pa の真空環境下で行い、キャリアを生成させた。電子線照射後、試料を空間電荷測定装置に設置し、大気圧下室温で高電界を印加し空間電荷分布を計測した。空間電荷分布から移動度を算出するため、本測定では周期 500 Hz の単極性矩形波を印加し、同時にパルス電圧 (パルス幅 5 ns, 1 kHz, $v_p = 200$ V) を印加した。印加時と短絡時に取得した空間電荷分布は印加と短絡それぞれ 400 波形ごとに平均化処理したものを 1 波形として用いた。以上の印加条件の下、総印加時間 10 min の測定を行った。

4. 単時間間隔の空間電荷測定結果及び移動度算出

Fig.7 に空間電荷分布及び空間電荷分布の経時変化を表すカラーチャートを示す。同図内の実線は試料-電極界面、あるいは照射試料と電荷注入抑制層との界面を示し、破線は Katz・Penfold の式により算出した 50 keV 照射時の計算飛程 (23 μm) を示している。

同図より、計算飛程位置から接地電極側への正電荷の移動が観測された。Fig.8 に、Fig.7 に示した測定結果の代表的な差分波形を示す。同図より、正電荷が電界印加中の陰極である左方へ移動していることが分かる。この結果から、差分波形での空間電荷蓄積の最大蓄積位置の重心を算出した。算出した重心の経過時間による変化及びその近似直線を Fig.9 に示す。重心位置の近似直線は最小二乗法で算出した。近似直線の傾きは電荷の移動速度とみなせることから、(2)式とそれぞれの重心位置と経過時間における電界値 E を用いて算出した結果を移動度 μ とした。その結果を Fig.10 に示す。それぞれの重心位置と経過時間における電界値を青い実線、算出した移動度を黒い実線で示した。同図より移動度の平均値を $1.6 \times 10^{-12} [\text{m}^2\text{V}^{-1}\text{S}^{-1}]$ と算出した。算出されたキャリア移動度のオーダーから、本測定で得られるキャリア移動度は不純物移動度であると考えられる。既報より、本研究グループでは ETFE のキャリア移動度を $10^{-14} [\text{m}^2\text{V}^{-1}\text{S}^{-1}]$ オーダーと算出していた。本報告ではさらに高い移動度を算出できた。これは高速測定を用いたことにより、既報よりも試料内でトラップされる確率の低い電荷を測定することができたためであると考えられる。以上の結果より、本測定システムにおいて既報よりも速い電荷の移動を観測・評価する事が可能である事が分った。

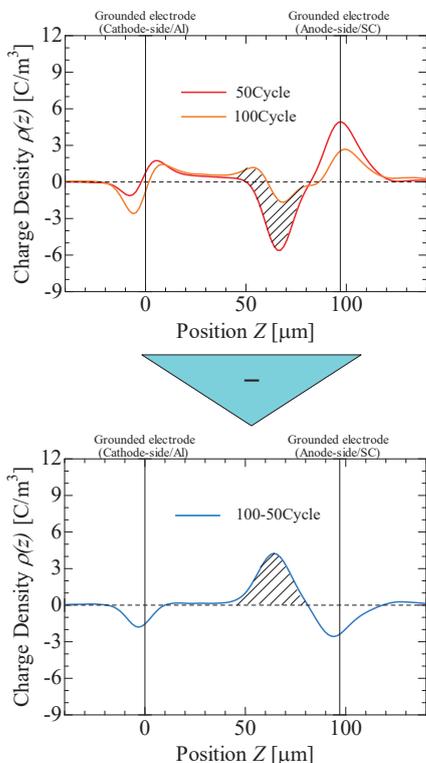


Fig.6 Calculated charge distribution waveform on measurement time progress (100 cycle's waveform was subtracted 50 cycle's waveform)

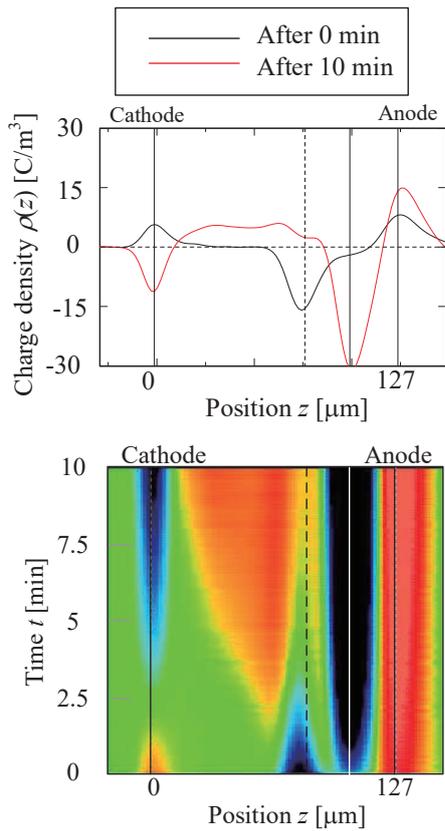


Fig.7 Space charge distribution waveform and Color chart of Space charge distribution in ETFE irradiated by electron beam

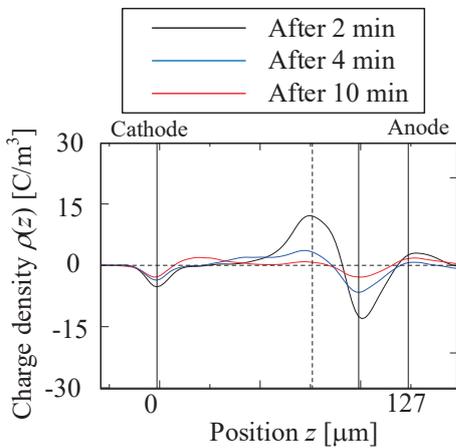


Fig.8 Space charge distribution subtracted

5. 結論と今後の予定

今回、電子線照射材料中に 500 Hz の単極性矩形波を印加し、その際のキャリア移動度の測定を試みた。その結果、既報よりも高い移動度を算出することができた。今後は本手法を用いて他種絶縁材料の測定を行い、測定の妥当性を検討していく予定である。

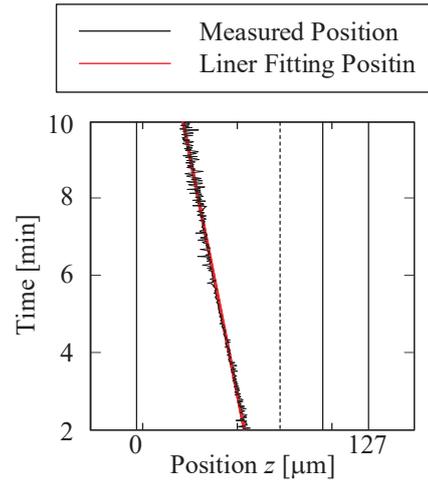


Fig.9 Elapsed time change of center of gravity and Linear approximation

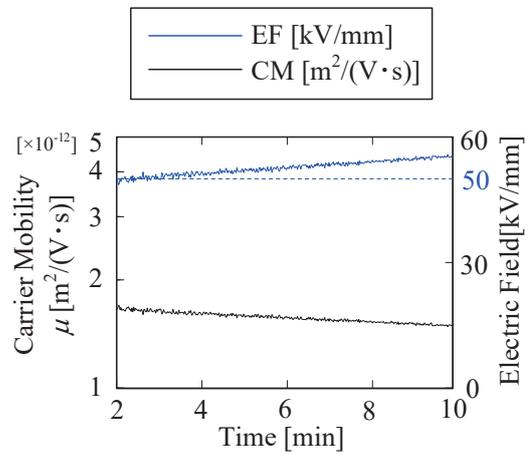


Fig.10 Calculated mobility and Electric field value

文 献

[1] 石崎 誠一, 佐藤 秀一, 田中 康寛, 深尾 正, 高田 達雄:「温度変化ともなう試料中の空間電荷分布測定手法の確立」, 電気学会誌 A, Vol. 124, No. 10, pp. 902-908 (2004)

[2] 吉田 周吾, 永瀬 崇浩, 岩間 健太, 三宅 弘晃, 田中 康寛, 電子線照射フッ素系絶縁材料中の電子正孔対生成量の解析, 電気学会論文誌 A, Vol. 137, No. 11, pp. 632-638, 2017年 11月