

誘電体体積抵抗率計測時の温度可変システムについて

○櫻井和也, 江面裕貴, 森岡祐貴, 渡邊力夫, 目黒在, 三宅弘晃 (東京都市大学)
仁田工美 (JAXA)

Temperature Control for Volume Resistivity Measurement
Kazuya Sakurai, Yuki Ezura, Yuki Morioka, Rikio Watanabe,
Akira Meguro, Hiroaki Miyake (Tokyo City University)
Kumi Nitta (JAXA)

Key Words: Dielectrics, Volume resistivity, Charge storage method

Abstract

A sample temperature control system using Peltier device is developed for volume resistivity measurement of dielectrics. Four Peltier devices are installed under a dielectric film to keep sample temperature from -40 deg. to +80 deg. As a result of heat conduction test under vacuum, we found that the temperature is controlled within 1 deg when the temperature setting is 80 deg, but in the case of negative temperature setting, the temperature does not decrease because heat dissipation is not adequate. We measured volume resistivity of polyimide film by a charge storage method with temperature variation. The results indicate that volume resistivity in dark current region decreases as the sample temperature increases as theoretically estimated.

1. 研究背景

1.1. 諸言

宇宙機は、宇宙環境、特にプラズマ環境及び放射線環境下で帯電・放電し、それが原因で絶縁破壊による材料の劣化・損傷、搭載機器の故障や全損事故を引き起こすことが知られている[1]。したがって、宇宙機は設計段階から帯電の定量的な解析を行う必要がある。また、人工衛星等の宇宙機には、誘電体が絶縁・断熱の目的で使用されている。誘電体帯電に大きな影響を与えるものは、誘電体自体の電荷蓄積特性であり、それは体積抵抗率で評価される。体積抵抗率とは材料内部の電荷移動の起こりにくさを表す値であり、体積抵抗率の高い誘電体ほど高い絶縁性を持つ。その反面、物質内部や表面での電荷の移動度が低く、一度帯電した際の電界の緩和時間が長くなる。電界緩和時間が長くなると、例えば地球を周期的に周回する人工衛星等では、累積的に電荷の蓄積が起り、放電の危険性が高くなる可能性がある。

従来、誘電体等の体積抵抗率は、JIS[2]や ASTM[3]に規定されたコンデンサ法 (Capacitor method) で計測された。しかし、実際に宇宙機が帯電するような高電界下では、オームの法則が成り立たず、実際に

宇宙機が帯電した時との差異が指摘されてきた[4][5]。

2003年に米国の Frederickson と Dennison らは、真空チャンバと電子銃を用いて、宇宙機が宇宙空間にて帯電する状況を模擬し、試料の表面電位の減衰から体積抵抗率を求める電荷蓄積法 (Charge storage method) を考案した。電荷蓄積法で計測された体積抵抗率は、コンデンサ法で測定された時の $10^2 \sim 10^4$ 倍程度大きくなると報告されている[4]。

この報告が正しければ、電界の緩和時間が長くなり、周期的に荷電粒子照射を受けるような宇宙機の帯電設計に大きな影響を与えるため、帯電解析を根本的に見直す必要がある。しかしながら、電荷蓄積法に関しては、開示されているデータや研究例が乏しい。

また、軌道上環境とえば、宇宙機は低軌道上で $-150^\circ\text{C} \sim +120^\circ\text{C}$ の温度下にさらされることが知られている[6]。体積抵抗率や誘電率は試料温度によって大きく変動することが知られている[5]ので、体積抵抗率に対する温度の影響を調べることは重要である。温度が上昇すると材料内部の電子移動度が上昇し、電荷が移動しやすくなる。これは、導電率の増加を意味し、その逆数である体積抵抗率は減少することになる。

1.2. これまでの研究

著者らは、体積抵抗率計測装置及び計測手法の確立を目指して研究を行ってきた。2008年度までに計測手法が確立し、計測ができるようになった。これまでの計測結果によると、電荷蓄積法によって得られた体積抵抗率はコンデンサ法に対して、1桁程大きな値となった。また、減衰時定数を電子線照射後数日で取るか、一週間後程経ってから取るかにより、体積抵抗率が2桁程変動することもわかった[7]。

電荷蓄積法による計測では、計測に2週間程度の時間を要し、試験数を稼ぐことが難しい。そこで、一度に3つの試料をチャンバ内に入れて計測することができる試料台を製作した。同時に、温度制御システムとしてペルチェ素子を使った制御システムを試料台内に組み込んだ。温度制御実験を実施した結果、高温側は+80℃までの温度上昇及び温度制御システムによる温度維持を確認できた。しかし、低温側は十分に下がらなかった。

2. 研究目的

本研究では、温度制御システムを確立し、ポリイミドフィルム等の宇宙機に利用されている代表的な誘電体試料の体積抵抗率に対する温度の影響を定量的に解析することを目的とする。また、温度変化については、宇宙機が軌道上で曝されるであろう-150℃～+120℃を最終目標とする。

本稿では、主に3連試料台設計、3連試料台の伝熱試験、試料を高温にした場合の体積抵抗率計測実験について示す。

3. 電荷蓄積法による体積抵抗率の測定

真空チャンバ内で電子線を試料に照射して、試料を帯電させる。電子線照射終了後からの表面電位の時間履歴から減衰時定数を求め、体積抵抗率を求める。電子線照射終了後から十分時間が経ち暗電流のみが流れる状態になると、表面電位の減衰は指数関数で近似できるようになる。表面電位を $V(t)$ とすると、以下のような式を適用する。

$$V(t) = V_0 e^{-t/\tau_d} \quad (1)$$

式(1)中の τ_d [s]が減衰時定数であり、式(2)で表される。

$$\tau_d = \epsilon/\kappa \quad (2)$$

式(2)より、実験で取得できる τ_d [s]を代入することで導電率 κ [1/Ωm]を計算することができる。ここで、 ϵ [F/m]は試料の誘電率である。

また、体積抵抗率 ρ_v [Ωm]は式(3)のように表すことができる。

$$\rho_v = 1/\kappa \quad (3)$$

ここで減衰時定数 τ_d [s]は、式(2)、(3)より式(4)で表せる。

$$\tau_d = \rho_v \epsilon \quad (4)$$

式(1)に示したような指数減衰モデルを用いると、分極などの試料材質固有の値に左右されることなく体積抵抗率を求めることができる。このモデルは、分極の収まった暗電流領域を対象としているため、計測される表面電位の時間履歴を片対数グラフでプロットすることで暗電流領域である指数減衰区間を直線で確認し、指数近似を行う。

4. 体積抵抗率の温度依存性[5]

誘電体の活性化エネルギーを U [J], ボルツマン定数を κ [J/K], 真の体積抵抗率を ρ_0 [Ωm]とすると温度 T [K]における体積抵抗率 ρ [Ωm]は、

$$\rho(T) = \rho_0 \exp(U/\kappa T) \quad (5)$$

と表せる。

5. 体積抵抗率計測システム

Fig.1に電荷蓄積法による体積抵抗率計測システム構成図を示す。体積抵抗率計測システムは、表面電位計（トレック製、Model 341B）、微小電流計（アドバンテスト製、TR8652）、真空チャンバ、電子銃（日本ビーテック製）、試料台、真空チャンバ内でプローブ及び試料台を移動させるためのリニアドライブ、熱電対で構成されている。

一定時間の電子線照射終了後、リニアドライブを動かし、表面電位計のプローブを試料の電子線照射部まで移動させる。表面電位計からの表面電位をオシロスコープで読み取りデータを保存する。表面電位の時間履歴より時定数を算出し、体積抵抗率を求める。

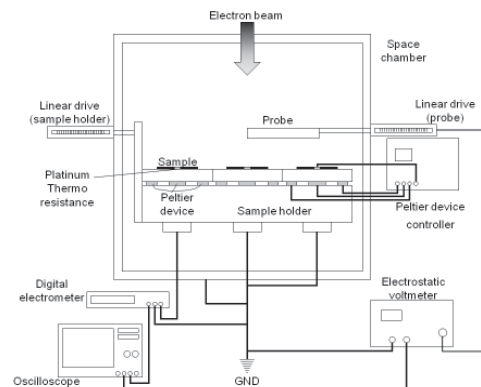


Fig.1 System configuration for charge storage method

6. 試料台設計

Fig.2 に製作した 3 連試料台を示す。

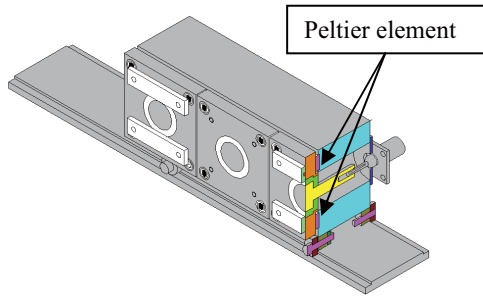


Fig.2 Present sample holder

6.1. 要求条件

電荷蓄積法により体積抵抗率計測を行うには、案電流領域までの表面電位計測が必要で、通常 2 週間以上の時間が必要である。2008 年度まで使用していた試料台は、一度に 1 つの試料しか置くことができなかった。そのため、効率化が必要であった。そこで、以下の 2 点を満たす試料台を設計した。

- ・複数の試料を固定できること。
- ・試料の中心温度を -40°C ~ $+80^{\circ}\text{C}$ の範囲で変えることができ 2 週間以上維持する。

6.2. 温度制御システム

一週間以上の長期間で $\pm 1^{\circ}\text{C}$ 程度の精度で保持できる必要があるため、ペルチェ素子を使用することにした。ペルチェ素子は温度を電気的に制御でき、チャンバ汚染の可能性も少ないことから選定した。

6.3. ペルチェ素子

ペルチェ素子には株式会社フジタカ製のマイクロペルチェモジュール(FPM1-71008)を使用する。温度保障使用範囲は -40°C から 80°C である。ペルチェ素子とは、電力により加熱・冷却量の調節を行える素子のことである。主成分はビスマステルリウムという半導体でできており、電流を流すと吸熱側から放熱側に熱を移動させる。電流の方向により加熱面・冷却面の反転が行える。また電流の大きさにより吸熱量を変えることができるという様々な利点がある。

6.4. ペルチェ素子コントローラー

ペルチェ素子のコントローラーには株式会社フジタカ製のペルチェコントローラー(T-099-4067Pt)を使用する。このコントローラーは白金測温抵抗体で温度を計測し、PID 制御でペルチェ素子表面を目標温度に制御するようになっている。

6.5. 試料台の断面図について

Fig.3 に試料台断面図を示す。

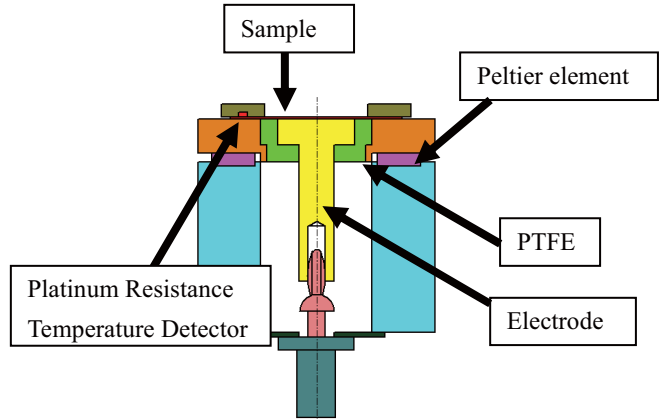


Fig.3 Cross section of sample holder

ペルチェ素子は、試料側のアルミ板と BNC コネクタ側のアルミブロックに挟まれており、対角で 4 個配置されている。温度制御点は、白金測温抵抗体すなわち試料押さえ直下の試料表面温度である。

7. 3 連試料台の伝熱試験

7.1. 試験条件

Fig.4 のように白金測温抵抗体と K 型真空用熱電対を用いて、微小電流測定用試料部分の温度測定を行った。実際に試料を温めることを考慮するため、3 連試料台の 1 つに Kapton[®]200H を取り付けて、大気中及び真空チャンバを用いて真空中で試験を行った。ペルチェコントローラーに白金測温抵抗体とペルチェ素子を配線し、ペルチェコントローラーの設定温度を 80°C と -9°C に設定した。また、温度制御された点の試料温度（白金測温抵抗体）と試料中心温度が目標温度に到達するかも同時に試験を行った。

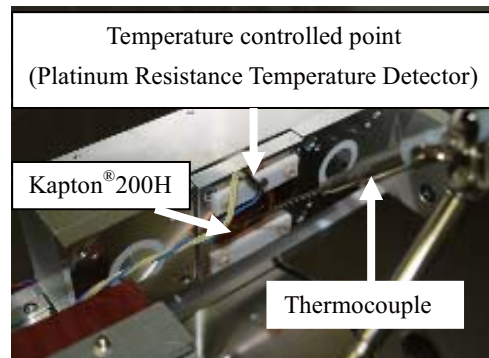


Fig.4 Heat conduction test

7.2. 大気中における伝熱試験結果及び考察

(1) 加熱設定 (目標温度 80°C)

Fig.5に測定結果を示す。Fig.5の縦軸は温度 T [°C]を示し、横軸は時間 t [min]を示している。温度制御点の温度は白金測温抵抗体の測定値であり、試料中心温度はK型真空用熱電対による試料中心点の測定値である。

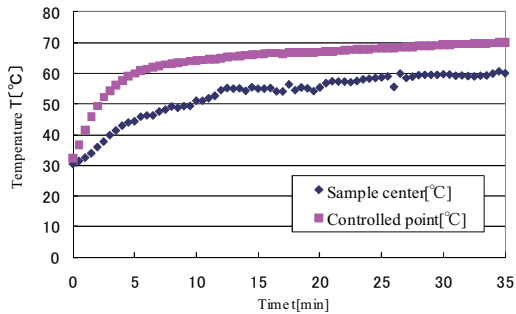


Fig.5 Temperature of sample [under atmosphere]

Fig.5より、大気中でペルチェコントローラーを加熱設定 (目標温度 80°C) にしても、制御点の温度は目標温度である 80°C まで達しなかった。大気中であるため、ペルチェ素子の効率が低くなってしまったことが原因であると考えられる。試料中心温度についても、60°C 程度までしか上昇しなかった。

(2) 冷却設定 (目標温度 -9°C)

Fig.6に測定結果を示す。

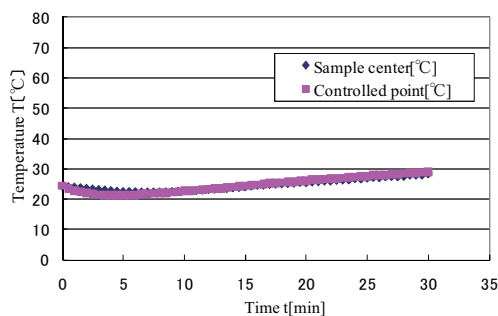


Fig.6 Temperature of sample [under atmosphere]

Fig.6より、大気中でペルチェコントローラーを冷却設定 (目標温度 -9°C) にすると、試験開始から 5 分までは温度制御された点の試料温度、試料中心温度ともに 2°C 程度減少する。しかし、目標温度まで減少する前に上昇に転じている。放熱側の排熱処理を行っていないため、十分な冷却が行われなかった。今後は排熱処理を適切に行う必要がある。

7.3. 真空中における伝熱試験結果及び考察

(1) 加熱設定 (目標温度 80°C)

Fig.7に測定結果を示す。Fig.7の縦軸は温度 T [°C]を示し、横軸は時間 t [min]を示している。温度制御点の温度および、試料中心温度の値を示している。

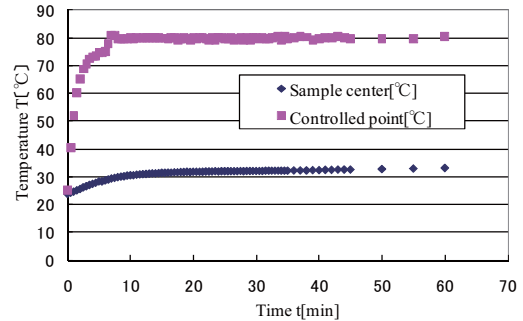


Fig.7 Temperature of sample [under vacuum]

Fig.7より、真空中でペルチェコントローラーを加熱設定 (目標温度 80°C) にすると、温度制御点における温度は、開始 7 分で目標温度に達する。その後は、80°C ± 1°C 程度で制御されている。試料中心温度は、最終的には 30°C 程度であり、温度制御点と約 50°C の差が生じてしまった。これは、試料内の温度分布が大気中比べて大きくなったためであると考えられる。対策としては、温度制御点を試料中心部直下に設定することが必要である。

(2) 冷却設定 (目標温度 -9°C)

Fig.8に測定結果を示す。

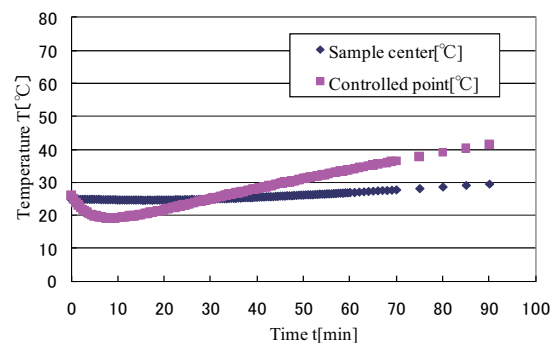


Fig.8 Temperature of sample [under vacuum]

Fig.8より、真空中でペルチェコントローラーを冷却設定 (目標温度 -9°C) にすると、温度制御点の温度は、一旦は減少するものの、最終的には試料中心点温度とともに上昇してしまう。これも同じく排熱処理を行っていないので、温度は減少しなかった。

8. 試料温度について

Table 1 にペルチェコントローラーの温度設定を温度設定なし、50℃、80℃にした場合の電子線照射前、電子線照射後、計測終了後の温度制御された点の試料温度と試料の右端温度を示す。なお、温度設定した場合は、温度制御された点の試料温度の温度が設定温度に達したときの試料温度を電子線照射前の温度とする。温度制御された点の試料温度は、白金測温抵抗体の測定値でペルチェコントローラーの温度表示である。試料の右端温度は、K 型真空用熱電対とヒートゲージの測定値である。

Table 1 Comparison of sample temperature

| Location of measurement | Temperature controlled point[°C] | | |
|-------------------------|--------------------------------------|------|------|
| Temperature setting[°C] | RT | 50 | 80 |
| Before Irradiation[°C] | - | 50.0 | 80.4 |
| After Irradiation[°C] | - | 50.1 | 80.0 |
| After measurement[°C] | - | 50.0 | 80.3 |
| Location of measurement | Right edge temperature of sample[°C] | | |
| Temperature setting[°C] | RT | 50 | 80 |
| Before Irradiation[°C] | 26.3 | 28.0 | 33.8 |
| After Irradiation[°C] | 26.2 | 30.9 | 34.0 |
| After measurement[°C] | 26.6 | 35.9 | 39.3 |

温度制御された点の試料温度は、設定した温度に到達している。しかし、温度制御された点以外の試料温度は設定した温度に達していない。試料内に温度分布が生じ、試料中心部の温度が十分に上昇していないことがわかる。

9. 温度上昇の体積抵抗率計測実験

9.1. 実験条件

試料は、ポリイミドフィルムである東レ・デュポン社製の Kapton®200H を用いた。ペルチェコントローラーの温度設定を温度設定なし、50℃、80℃の3つの温度を変化させた場合で計測を行った。なお、温度設定を行った計測は、温度設定した温度に温度制御された点の試料温度の温度が達してから電子線を照射した。また、温度設定なしは、従来の試料台を使用している。実験条件を Table 2 に示す。

Table 2 Experimental conditions

| Temperature setting[°C] | RT | 50 | 80 |
|---------------------------------------|------------------|----|----|
| Sample | Kapton®200H | | |
| Sample temperature[°C] | 26 | 36 | 39 |
| Sample thickness[μm] | 50 | | |
| Electron beam irradiation energy[keV] | 20 | | |
| Irradiation time[s] | 60 | | |
| Vacuum level[Pa] | 10 ⁻⁶ | | |
| Measurement time[h] | 240 | | |

9.2. 実験結果及び考察

表面電位の時間履歴を Fig.9 及び Fig.10 に示す。

Fig.9 は、両軸とも線形のグラフであり、Fig.10 は、Fig.9 の縦軸を対数表記にした片対数グラフを示している。縦軸は試料の表面電位（負電位）V[V]を示し、横軸は電子線照射終了後からの時間t[h]を示している。

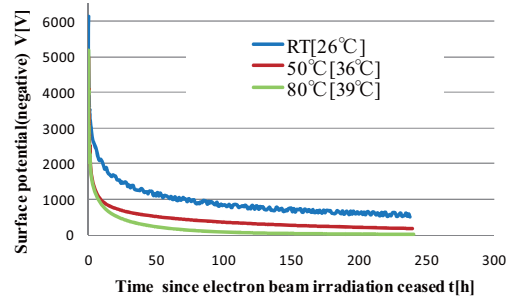


Fig.9 Time history of surface potential (linear plot)

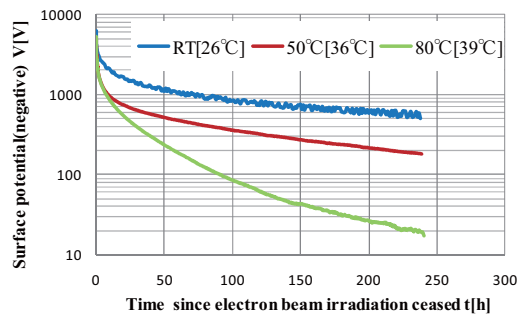


Fig.10 Time history of surface potential (Single-logarithmic plot)

電子線照射直後の試料の表面電位は、温度設定なしの場合は-6145V、温度設定 50℃の場合は-4999V、温度設定 80℃の場合は-5200V である。電子線照射終了後に表面電位の絶対値が急速に減衰し（表面電位は上昇し）、温度設定なしの場合で約 120s、温度設定 50℃の場合で約 270s で、温度設定 80℃の場合で約 60s で 1000V 減衰している。3つの場合とも、表面電位は急激に減衰し、その後、緩やかに減衰している。

温度設定が高いほど減衰が大きくなっている。今回の試料台では、温度設定を変えても試料中心温度は約 13℃しか変化はなかったが、50℃設定と 80℃設定において、数度程度の温度の違いによっても、得られる表面電位は大きく変動することがわかった。数度の温度変動とは、宇宙機の熱設計では誤差範囲であろうから、誘電体の体積抵抗率に対する温度の影響は非常に強く、宇宙機の熱解析および帯電解析は十分注意して行う必要があることが伺える。

Fig.10 をみても、試料中心温度が数度しか違わないのに、表面電位の暗電流領域における傾き（時定数）

は大きく変化し、その結果として体積抵抗率も大きく変動することがわかる。体積抵抗率の算出は、電子線照射終了後約100時間後以降からの減衰が指数的(片対数グラフ上で直線)になっていることから、この領域を暗電流領域と仮定し、指数減衰モデルを適用して時定数を出すことにより得られる。また、参考までに短時間領域[<1h]においても、指数減衰モデルを適用して体積抵抗率を算出してみた。Table 3に温度を変化させた場合の体積抵抗率を示す。

Table 3 Comparison of volume resistivity

| Temperature[°C] | Volume resistivity[Ωm] | |
|-----------------|------------------------|----------------------|
| | Dark current region | Short time[<1h] |
| RT[26] | 4.2×10^{16} | 3.3×10^{14} |
| 50[36] | 3.3×10^{16} | 1.7×10^{14} |
| 80[39] | 1.1×10^{16} | 1.7×10^{14} |

これより、暗電流領域では、 $10^{16}\Omega\text{m}$ オーダーの体積抵抗率を示しているが、温度が上昇するにつれて体積抵抗率の値が減少していることがわかる。このことは、Fig. 10の暗電流領域における直線の傾斜が異なっていることから見取れる。参考までに、コンデンサ法で測定された体積抵抗率は $1.0 \times 10^{15}[\Omega\text{m}]$ である[8]。

短時間領域[<1h]では、 $10^{14}\Omega\text{m}$ オーダーの値を示しており、温度による変化はあまりない。短時間領域の表面電位変動というのは、誘電分極による分極電流が支配的であり、比較的大きな電流が流れる時には、温度の影響が体積抵抗率という観点では、顕著に出てこないのではないかと考える。

次に、Fig.11に体積抵抗率と温度の関係を示す。縦軸は体積抵抗率 $\rho[\Omega\text{m}]$ を示し、横軸は温度 $1/T[\text{K}^{-1}]$ を示している。なお、温度設定なしは試料温度[26°C]としている。

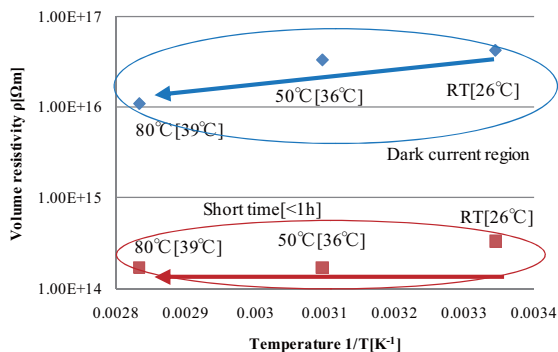


Fig.11 Relation of volume resistivity and temperature

一般的な傾向を論じるためには、もっと広い範囲の温度範囲に対する体積抵抗率の変化を見るべきで

はあるが、逆に、この狭い温度範囲内においてさえ、マクロな指標である体積抵抗率が影響を受けているということがわかった点は興味深い。今後はさらに広い温度変化に対する体積抵抗率の変動を解析する予定である。

10. 結論

一度に3つの試料を計測することができ、ペルチエ素子による温度制御システムを組み込んだ試料台を製作した。

3連試料台の伝熱試験を大気中、真空中で行った。加熱設定(目標温度80°C)では真空中で制御された点の試料温度が80°Cまで上昇し、制御された温度値を示した。しかし、試料中心温度は、目標温度には到達しない。また、冷却設定(目標温度-9°C)では、排熱処理を行っていないため、十分に温度が下がらなかった。

温度を変化させた場合の体積抵抗率は、暗電流領域では、 $10^{16}\Omega\text{m}$ オーダーの値の体積抵抗率を示し、温度が上昇するにつれて減少している。短時間領域[<1h]では、 $10^{14}\Omega\text{m}$ オーダーの値を示し、温度による影響は少なかった。

今後は、試料中心を目標温度に到達することができるよう温度制御を変更することと排熱処理を行うことが必要である。その他、照射エネルギーや試料厚さなどの影響も含めて、体積抵抗率の計測を行う。なお、本研究の一部は、科研費(21760655)の助成により実施した。

11. 参考文献

- [1] 五家建夫: 宇宙環境リスク, 丸善株式会社サービスセンター, pp. 110-116, 2006.
- [2] JIS C2139
- [3] ASTM D257-99
- [4] A.R.Frederickson and J.R.Dennison : IEEE Trans. on Nucl. Sci., Vol. 50, No. 6 , 2003
- [5] 電気学会: 誘電体現象論, 電気学会, pp. 203-258, 1973.
- [6] 日本航空宇宙学会: 第2版航空宇宙工学便覧, 丸善株式会社, pp. 1081, 1992.
- [7] 渡邊力夫, 三宅弘晃, 仁田工美: 宇宙機用誘電体材料に対する体積抵抗率計測法, 平成21年電気学会全国大会, 2009.
- [8] 東レ・デュポン株式会社カプトン®総合カタログ