

# 電子線照射したフッ素系絶縁材料における空間電荷蓄積特性

久保 亘平\*, 吉田 周吾, 三宅 弘晃, 田中 康寛 (東京都市大学)

## Space Charge Accumulation Characteristics in Fluorine-based Insulating Material Irradiated By E-Beam

Kohei KUBO\*, Shugo YOSHIDA, Hiroaki MIYAKE, Yasuhiro TANAKA (Tokyo City University)

We observed electron hole pairs inside the sample by irradiating the insulating materials by e-beam. However, it is not clear detailed characteristics of electron hole pairs. So we try to elucidate the relationship between the amount of electron hole pair and the condition of electron irradiation.

キーワード：電子線，空間電荷分布，電子・正孔対，FEP

Keywords：E-beam, Space charge distribution, electron-hole pairs, FEP

### 1. はじめに

人工衛星や宇宙探査機などの数多くの宇宙機は、 $\pm 150^{\circ}\text{C}$ という温度変化の激しい空間で運用されており、この激しい温度変動から機内の温度を一定に保つために、宇宙機表面はPI積層体の熱制御材やフッ素系絶縁材料を用いた太陽光反射材といった絶縁材料で覆われている。しかし、これらの絶縁材料が電子やプラズマなどの荷電粒子に曝されると、材料内部に荷電粒子が注入されて電荷が蓄積される。さらに、荷電粒子を絶縁材料で照射すると、分子鎖切断や空孔の形成により電気的特性が劣化する。この時、絶縁破壊の危険性は、材料内部の部分的な電界強調によって増加する。これらは、宇宙船の異常動作と表面材料の劣化を引き起こす。また、静電気による宇宙事故は全体の50%以上を占めると報告されている。[1]そのため、宇宙船の表面材質の導電率や試料内部の電荷蓄積などの絶縁特性を調べる必要がある。そこで、本研究グループでは、宇宙船の太陽光反射材として用いられるフッ素系絶縁材料のFEP (Fluorinated ethylene-propylene copolymer)に着目し、この材料に電子線を照射した後、宇宙環境で想定される直流高電圧を印加し、パルス静電応力法(Pulsed Electroacoustic Method: PEA法)[2][3]を用いて電子線照射された宇宙機用絶縁材料の空間電荷蓄積特性を評価している。先行研究では、電子線照射後に、試料内部に残存する電子・正孔対の量を実験的に計測することを試みた。そこで本研究では、残存する電子・正孔対を、電子線照射後に緩和時間を設けることによって再結合させることで、電子・正孔対の減衰特性を調査した。また、電子線照射条件を変更し、電子線照射試料内に残存する電子・正孔対の減衰特

性の変化を観測し、電子・正孔対の減衰速度と電子線照射条件の関係を調査したので以下に報告する。

### 2. 実験装置

#### 2.1. PEA 装置

図1にパルス静電応力法 (Pulse Electro-Acoustic Method: PEA 法)の原理図を示す。測定試料を高電圧電極と接地電極で挟み、高電圧と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た大きさを持ち、空間電荷分布を知ることができる。この手法の利点として、信号検出部が電氣的にシールドされているため電氣的雑音に強いこと、試料をシールド内部に設置する必要がないため操作性に優れていることが挙げられる。

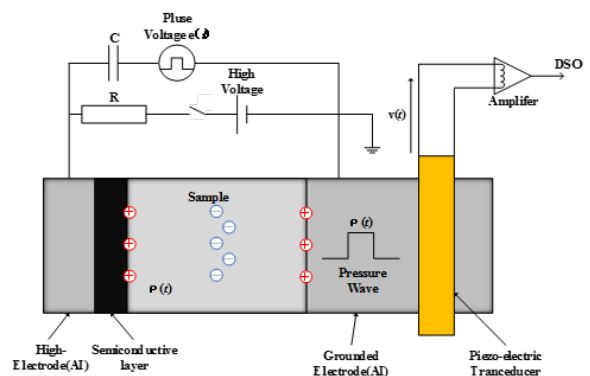


Fig.1 PEA method principle figure

## 2.2. 電子線照射装置

図2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しており、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。実際に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。

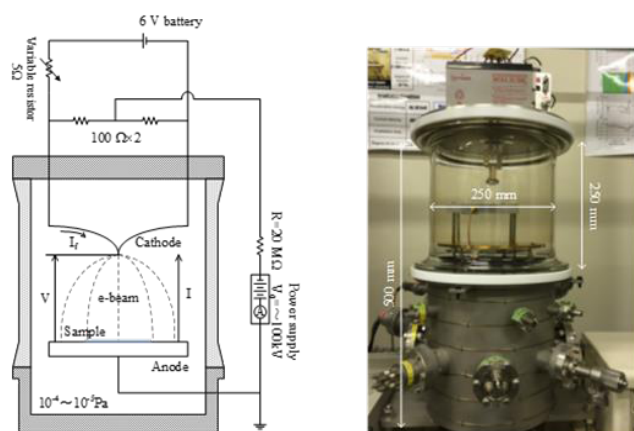


Fig.2 Schematic diagram and photo of electron irradiation facility

## 2.3. 電荷注入防止層

図3に、電子線未照射および電子線（加速エネルギー60 keV、照射電流密度  $30 \text{ nA/cm}^2$ 、照射時間5分間）を照射した FEP に、直流電圧（平均電界  $100 \text{ kV/mm}$  相当）を印加した際に得られた空間電荷分布の典型的な測定結果例を示す。同図(a)に示した未照射の試料では、顕著な電荷の蓄積が見られないのに対して、電子線を照射した試料では、試料内部に正・負電荷の蓄積が観測された。このような電荷の発生原因としては、電子線照射によって電荷注入障壁が低下したことにより、照射面である高電圧電極から電荷が注入されたか、試料内部に電子・正孔対が生成されたことによって生じていると考えている。しかし、図(b)に示した実験結果からは、電極から注入された電荷と試料内に残存する電子・正孔対による電荷は区別できない。そこで、今回の実験では、電極からの電荷の注入を防ぐために、試料の照射面と高電圧電極との間に、未照射試料（公称試料厚さ  $50 \mu\text{m}$ ）を挿入した。図4にブロッキングレイヤー挿入時の、測定状況のモデル図を示す。図3(a)に示すように、未照射の試料については電荷の注入は観測されておらず、未照射の試料を、電荷

注入を抑制する電荷注入防止層（ブロッキングレイヤー）として使用した。これにより、照射試料内部に残存する電荷のみの電荷挙動を観測できると予想した。

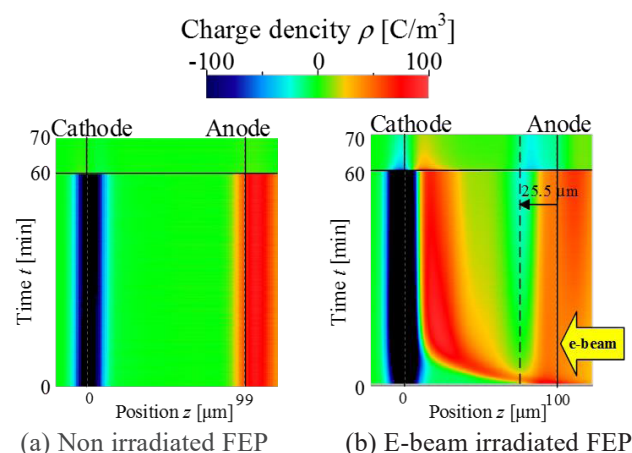


Fig.3 The charge accumulation behavior in the FEP under  $100 \text{ kV/mm}$

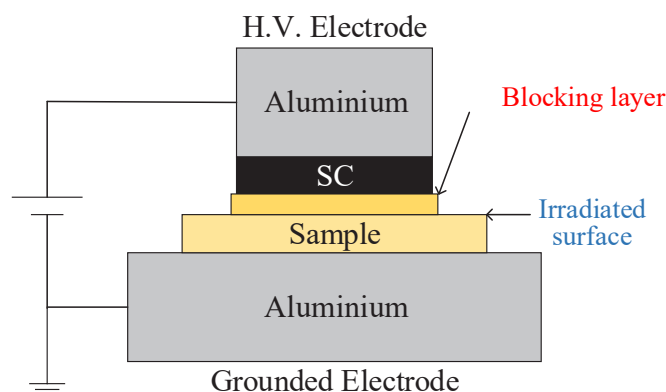


Fig.4 The schematic diagram of sample setting structure

## 3. 電子線照射 FEP の電子・正孔対減衰特性

### 3.1. 実験条件

使用した試料は公称厚  $100 \mu\text{m}$  の FEP フィルムである。照射条件として、加速エネルギー  $60 \text{ keV}$ 、電流密度  $5 \text{ nA/cm}^2$  の電子線を真空チャンバー内（圧力:  $10^{-5}$  Pa オーダー）で5分間照射し、照射後に緩和時間をそれぞれ0, 2, 6, 24時間設けて測定を行った。測定条件は、大気圧下で  $50 \text{ kV/mm}$  に相当する直流高電界を4分間印加、5秒間短絡を1サイクルとし、計10サイクル印加しその際の空間電荷分布測定を行った。測定間隔は5秒である。本測定の際には、2章で述べたように電子線照射面と高電圧電極の間に公称試料厚さ  $50 \mu\text{m}$  の未照射 FEP を挿入し、電荷注入防止層とした。

### 3.2. 測定結果および考察

図5に電子線照射後に緩和時間を0, 2, 6, 24時間設

けた FEP の短絡時の空間電荷分布測定結果および正・負電荷蓄積量を示す。各図中の実線は試料の積層界面を示しており、破線は電子線の最大飛程を示している。なお、電子線の最大飛程は以下に示す Katz-Penfold 式より算出したものであり、 $0.01 < E < 0.25$  MeV の範囲に適用可能であるとされている。[4]

$$R_{\max} = 0.412E^{1.265-0.0945\ln(E)} \quad (1)$$

また、同図(a)は電圧印加前の短絡時および、各サイクルにおける短絡時の空間電荷分布、(b)は短絡時の空間電荷分布図から算出した試料内部の正負電荷蓄積量を示している。まず、直流電圧印加前に短絡状態で電荷分布を測定し、その電荷量  $Q_{ie}$  を算出する。同図(a)中、緑線は FEP に上述の条件の電子線を照射した後に、短絡状態で測定して得られた電荷分布であり、ここで観測された負電荷は、電子線照射により試料内に残存する電子であると考えられ、この負電荷分布を積分することにより  $Q_{ie}$  を求めた。ただしこの状態では、電子線照射により電子・正孔対が生成され試料内に残存したとしても、電子と正孔が近接して存在しているために、見かけ上観測されない。次に、直流電圧を印加すると残存する正孔と電子が印加電界により移動するため、観測されるようになる。この場合、同図(a)に示す短絡状態の測定結果で明らかなように、電圧印加前には観測されなかった正電荷と負電荷の蓄積が観測されている。この波形で正電荷分布と負電荷分布とを、それぞれ別々に積分することによって、正電荷量と負電荷量を算出するが、この分布には前述した残存する照射電子が含まれるため、算出した正電荷量に  $|Q_{ie}|$  を加えた量を正

孔の電荷量  $Q_h$ 、算出した負電荷量から  $|Q_{ie}|$  を減じた量を残存電子・正孔対の電子の量  $Q_e$  として算出した。なお、同図(b)は、正・負電荷蓄積量の比較を行うため、絶対値表示している。なお、この量は電荷密度  $[C/m^3]$  を厚さ方向に積分して求めた量であるため、単位は  $[C/m^2]$  となっている。

図 5(A-a)より、電子線照射 0 時間後に測定を行った FEP の測定結果では、電子線照射試料とブロッキングレイヤー界面に負電荷の蓄積が観測され、試料内部には正電荷の蓄積が観測された。さらに、同図(A-b)より、短絡時に観測された電荷分布から算出した正・負電荷蓄積量は、概ね等量であることが確認できる。すなわち、本実験で短絡時に観測された FEP 内部の正・負電荷蓄積は、電子線照射により生成され、残存した電子・正孔対によるものであると考えられる。次に、同図(B, C, D-a)より、電子線照射後に緩和時間を設けた試料では、電子線照射 0 時間後の測定結果と同様に、電子線照射試料とブロッキングレイヤーの界面には、負電荷が蓄積する様子が観測されたが、その量は緩和時間 0 時間後の測定結果と比較すると、減少していることがわかる。さらに、同図(B, C, D-b)より、正負電荷蓄積量は、概ね等量であり、緩和時間が長くなることでその値は減少していることが確認できる。すなわち、本実験で短絡時に観測された FEP 内部の正・負電荷は、電子線照射によって生成され、残存した電子・正孔対であると考えられ、緩和時間を設けることによって電子・正孔対が再結合している様子を観測できたと考えられる。次に、電子線の各要素が電子・正孔対の特性に及ぼす影響を調査するため、電子線の照射条件を変化させたときの電子・正孔対の減衰特性の観測を行った。

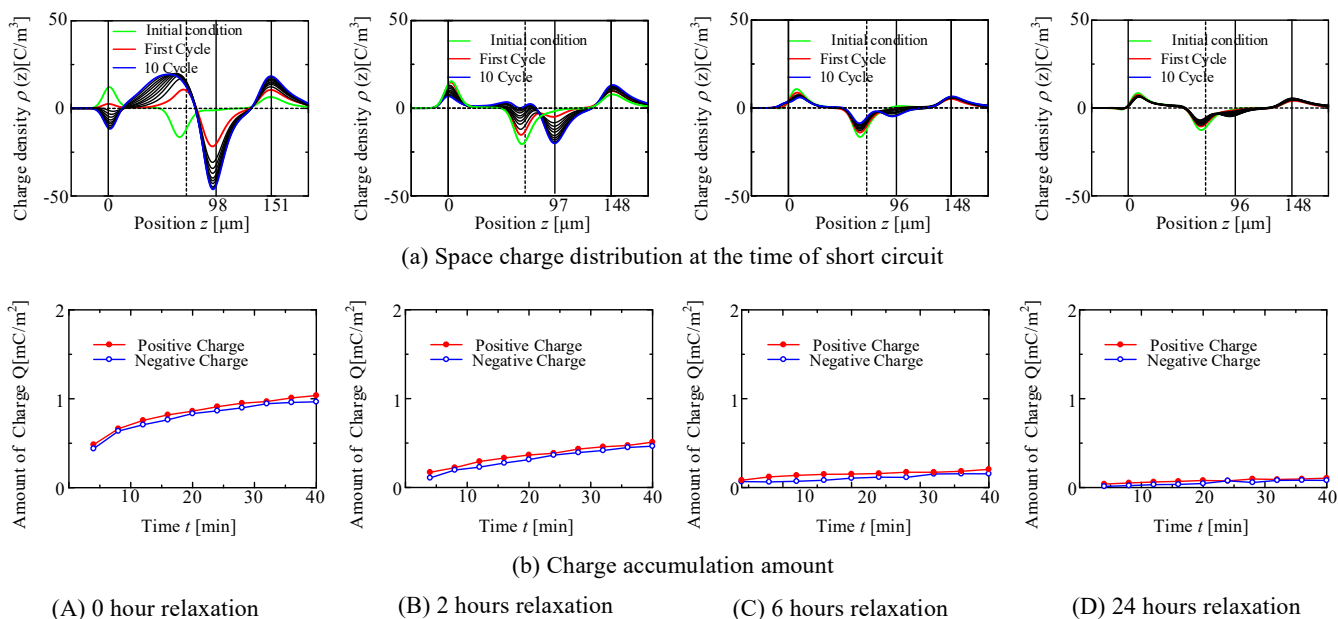


Fig.5 Space charge distribution in irradiation FEP with blocking layer under 50 kV/mm



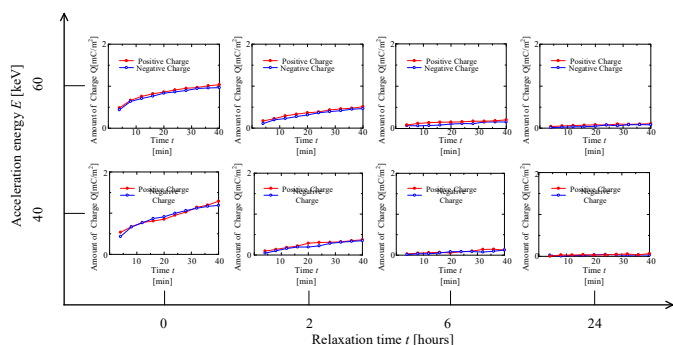


Fig.6. Charge accumulation amount for each acceleration energy

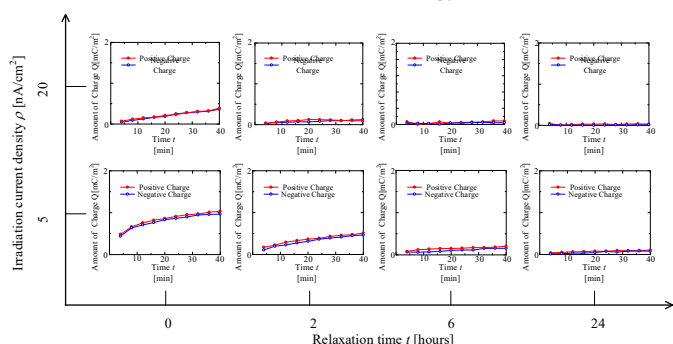


Fig.7. Charge accumulation amount for each irradiation current density

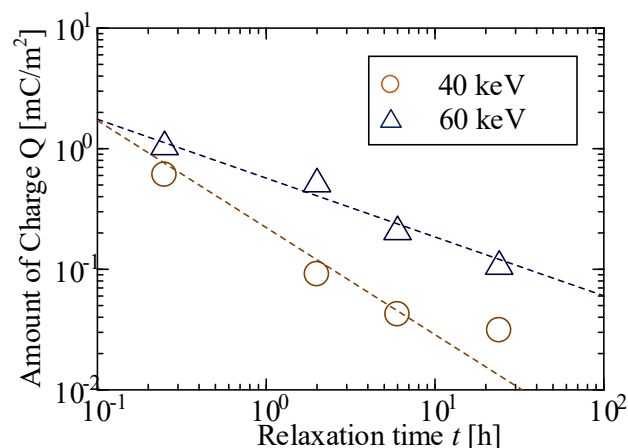


Fig.8. Relaxation time dependence of electron hole-to-residual amount each acceleration energy

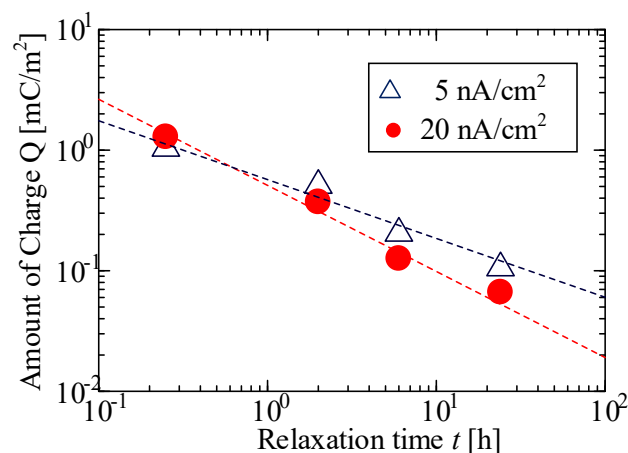


Fig.9. Relaxation time dependence of electron hole-to-residual amount each irradiation current density

## 4. 電子線照射条件と電子・正孔対減衰特性の関係

### 4.1. 実験条件

使用した試料は公称厚 100  $\mu\text{m}$  の FEP フィルムである。変更する照射条件は、加速エネルギーと照射電流密度とした。加速エネルギーを変化させた場合の照射条件は、加速エネルギーを 40 keV、照射電流密度を 5  $\text{nA}/\text{cm}^2$  とした。照射電流密度を変化させた場合の照射条件は、加速エネルギーを 60 keV、照射電流密度を 20  $\text{nA}/\text{cm}^2$  とした。以上の照射条件の電子線を真空チャンバー内(圧力:  $10^{-5}$  Pa オーダー)で 5 分間照射し、照射後に緩和時間をそれぞれ 0, 2, 6, 24 時間設けて測定を行った。測定条件は、大気圧下で 50 kV/mm に相当する直流高電界を 4 分間印加、5 秒短絡を 1 サイクルとし、計 10 サイクル印加し、その際の空間電荷分布測定を行った。測定間隔は 5 秒である。本測定の際には、2 章で述べたように電子線照射面と高電圧電極の間に公称試料厚さ 50  $\mu\text{m}$  の未照射 FEP を挿入し、電荷注入防止層とした。

### 4.2. 測定結果および考察

図 6, 7 に、各照射条件で電子線照射した FEP 内部の正・負電荷蓄積量を示す。図 6, 7 の、電子線照射 0 時間後に測定を行った FEP の測定結果より、加速エネルギー、また照射電流密度の増加にともない、試料内部の正負電荷蓄積量が増加していることが確認できる。また、いずれの照射条件下においても、緩和時間の増加にともない正負電荷蓄積量の減少が観測された。これは前述のように、緩和時間を設けることによって電子・正孔対が再結合したためであると考えられる。この結果より、いずれの照射条件下においても、緩和時間を設けることによる電子・正孔対の再結合を観測した。次に、照射条件と電子・正孔対の減衰特性の関係性の検討を行った。電子・正孔対が完全に分極している状態で比較を行う必要があるため、電圧印加 40 分後の正電荷蓄積量を用いて比較・検討を行った。図 8, 9 に各電子線照射条件で電子線を照射した FEP の電圧印加 40 分後の正電荷蓄積量の両対数グラフを示す。図 8 より、電子線照射後に緩和時間を 0 時間設けた時には加速エネルギーが大きいほど電子・正孔対の残存量も多いことがわかる。一方、緩和時間を 2~6 時間設けた場合、加速エネルギーが低いほど、電子・正孔対の減衰が速いことがわかる。以上の結果より、電子・正孔対の減衰速度は、加速エネルギーによって変化する。今回の測定結果からは、加速エネルギーが低いほど電子・正孔対の減衰速度が速くなるといった結果が得られた。一方、図 9 より、電子線照射後に緩和時間を 0 時間設けた時には電子・正孔対の残存量は、20  $\text{nA}/\text{cm}^2$  の電子線を照射したほうが多くなることが観測された。しかし、緩和時間を 2~6 時間設けた場合、

照射電流密度が大きいほうが電子・正孔対の減衰が速いことがわかる。以上の結果より、電子・正孔対の減衰速度は、照射電流密度によって変化し、今回の測定結果からは、照射電流密度が高いほど電子・正孔対の減衰速度が速くなるといった結果が得られた。

以上のような結果が得られた原因の一つとして、照射条件によって電子線照射領域での導電率等が異なることで、電荷が移動しやすくなり、電子・正孔対が再結合しやすくなっているのではないかと考えられるので、今後検討していく必要がある。

## 5. 結論

電子線照射した FEP の電気的特性を評価するために電子線照射後、直流高電界を試料に印加することで生じる空間電荷(電子・正孔対)蓄積特性および減衰特性の評価を行った。今回は特に、電子線の照射条件である加速エネルギーと照射電流密度を調整し、それらの照射条件と試料内部に生成される電子正孔対の減衰特性の関係を調査した。その結果、加速エネルギーを増加させることで、電子・正孔対の生成される量は増加し、時間経過による減衰速度は遅くなった。一方、照射電流密度を増加させると、生成される電子正孔対の量、減衰速度ともに増加することが観測された。これは電子線の照射条件によって、電子線照射領域での導電率等が異なることで、電荷が移動しやすくなり、電子・正孔対が再結合しやすくなっているのではないかと考えられる

## 6. 参考文献

- [1] Sanju Hiro, Haruhisa Fujii, Toshio Abe and Hironobu Nishimoto: “Charging of Insulating Materials on Satellite in Geostationary Orbit Environment”, T.IEE Japan, Vol.118-A, No.7-8 p.759-766 (1998)  
廣三壽, 藤井治久, 阿部俊雄, 西本博信: 「静止軌道宇宙環境における熱制御用絶縁性材料の帯電観測」, 電学論A, Vol.118, No.7-8 p.759-766 (1998)
- [2] Y. Li, et. al : “Pulsed Electroacoustic Method for Measurement of Charge Accumulation in Solid Dielectrics”, IEEE Trans. DEI, Vol.1, No.2, pp.188-195, 1994
- [3] T. Takada, “Acoustic and optical methods for measuring electric charge distributions in dielectrics”, IEEE Trans Plasma Science., Vol. 34, pp. 2176-2184, 2006
- [4] L. Katz and A. S. Penfold, “Range-energy relations for electrons and the determination of beta-ray end-point energies by absorption,” Reviews of Modern Physics, vol. 24, no. 1, pp. 28 LP -44, 1952.