

# 極低温下で帯電したポリイミドフィルムの表面電位と体積抵抗率評価

澁谷優樹, 渡邊力夫, 宮坂明宏 (東京都市大学)

Surface Potential History and Volume Resistivity of Polyimide Film at Cryogenic Temperature

Yuki Shibuya, Rikio Watanabe, Akihiro Miyasaka (Tokyo City University)

## 1 はじめに

宇宙機はプラズマや放射線環境に曝されながら飛行するが, このような宇宙環境下において宇宙機は帯電することがある. 宇宙機帯電は静電放電に至ることがあり, 絶縁材料の破壊を引き起こしたり, 放電時に発生するECMが電子機器に不具合を起こすことがある. 宇宙機帯電は宇宙機の寿命を大きく左右する要因となるため, 設計段階から帯電放電を考慮することは必須となった.

そこで, 日本では衛星帯電解析ソフトウェア MUSCAT (Multi Utility Spacecraft Charging Analysis Tool) [1]が開発された. MUSCAT を用いることで, 宇宙機帯電に起因するリスク評価が可能となった. MUSCAT を用いて帯電解析を行うためには, 材料のパラメータが必要となる. 材料パラメータには, 体積抵抗率, 二次電子放出係数, 光電子放出係数, 誘電率などがある. 本研究室では, 体積抵抗率に着目して研究を行っている. 体積抵抗率は電荷の移動度に影響を及ぼし, 帯電の緩和時間を左右するパラメータである.

体積抵抗率は温度の影響を受ける. 誘電体の体積抵抗率は温度が低くなるにつれて上昇し, 高温になると減少する. 常温下や高温下では, 式(1)に示すアレニウス型のモデル式に従って変化する[2]. 式(1)中の $\rho$ は体積抵抗率,  $T$ は温度,  $U$ は活性化エネルギー,  $k$ はボルツマン定数である. Fig. 1 は温度と体積抵抗率の関係で, 式(1)の関係を示した一例である[3].

$$\rho(T) \propto \exp\left(\frac{U}{kT}\right) \quad (1)$$

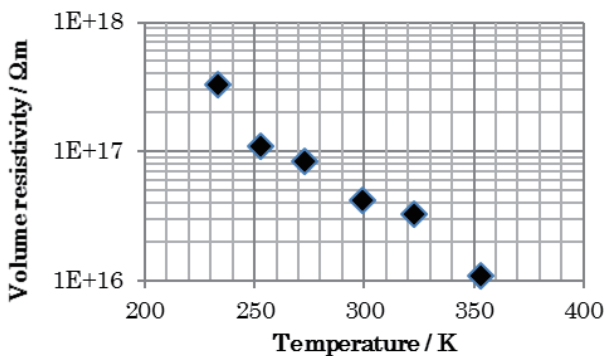


Fig. 1 Volume resistivity as function of temperature (Kapton® 200H) [3]

## 2 極低温下における誘電体の体積抵抗率

体積抵抗率が式(1)に示すアレニウス型に従うとすると, 絶対温度 0 K で発散するが, 実際はそのようにはならないので, 別のモデル式を適用する必要がある. 極低温下においては, 格子振動に起因するフォノン効果が小さくなって, 電子がエネルギーを受け取り移動することが困難となる. このため移動度が極めて小さくなり, 材料の導電率も極めて小さくなる (体積抵抗率は上昇). 極低温下におけるモデルとしては, 広範囲ホッピング型 (Variable Range Hopping: VRH) モデルがある. このモデルについての詳細は後述する.

赤外線天文衛星は, 微弱な赤外線を観測するために望遠鏡部を数 K オーダーまで冷却する. 太陽から放たれる強力な赤外線を遮断するためにサンシールドを備えている. NASA が開発中の JWST[4]の場合, 5 層の Kapton® が用いられ, 最も低温側のサンシールド温度は 40 K になるとされている[5]. 他にも, JAXA と ESA が共同開発中の SPICA[6]も, サンシールドを備え, 低温側の温度は 50 K 程度になるとされている. ところが, 100 K を下回るような低温域における宇宙機用誘電体材料の電気的特性については研究例が少ない. 低温域では誘電体の体積抵抗率が上がるとされているため, 一度帯電すると緩和するまでに長い時間を要する可能性がある. よって, 低温域における帯電した誘電体の体積抵抗率と, 帯電後の表面電位履歴を取得することは重要である.

## 3 研究目的

低温下におけるポリイミドフィルムの帯電特性を明らかにする. 実験に用いる試料は Kapton® 200H で, 電荷蓄積法により表面電位履歴と体積抵抗率を求める. また, GM 冷凍機とヒータ, 温度コントローラにより, 極低温から高温域までの試料温度制御を可能にする. 低温下における体積抵抗率が得られた後は, VRH モデルを適用し比較を行う.

## 4 計測システム

体積抵抗率を求めるために, 電荷蓄積法 [7]を用いた. 真空チャンバー内に設置した試料に電子線を照射して試料を帯電させ, 電子線照射終了後の表面電位履歴から体積抵抗率を計算する手法である. 実験装置図を Fig. 2 に示す.

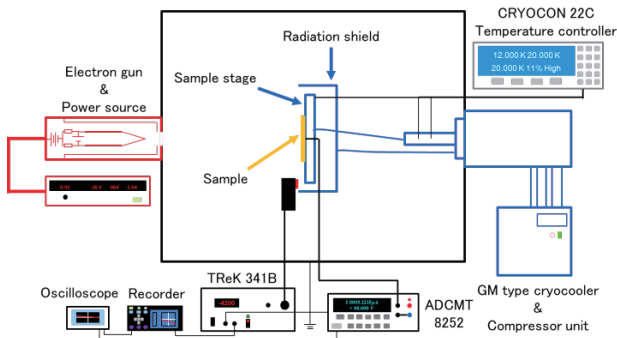


Fig. 2 Experimental setup

真空チャンバは、 $10^5 \sim 10^6$  Pa 以下まで圧力を下げることができる。赤い機器は電子銃と電源である。黒い機器は表面電位計、電流計、オシロスコープ、レコーダーである。青い機器は冷凍機関係で、今回新たに導入した機器である。GM 冷凍機、圧縮機ユニット、温度コントローラ、シリコンダイオード温度センサ、50 W ヒータで構成されている。また、極低温用のサンプルステージとシールドを新たに製作し実装した。機器の詳細を Table 1 に示す。

Table 1 Specifications of experimental apparatus

Appratus	Manufacture	Model number
Electron gun (Power source)	Choshu Industry	VE-056S, 50 keV (VP-058S)
Surface electrometer	Trek Japan	Model 341-B
Digital electrometer	ADC	8252
Data logger	Hioki	8430
Oscilloscope	Tektronix	DPO7104
GM type cryocooler (compressor unit)	Sumitomo Heavy Industries	V204SCP (U104EWA)
Temperature controller	Cryogenic Control Systems	Model 22C
Silicon diode Thermometer	Scientific Instruments Inc.	Si410A (Sanple stage)

5 サンプルステージとクライオスタット

低温専用のサンプルステージを製作した。サンプルステージの 3D モデルを Fig. 3 に示す。

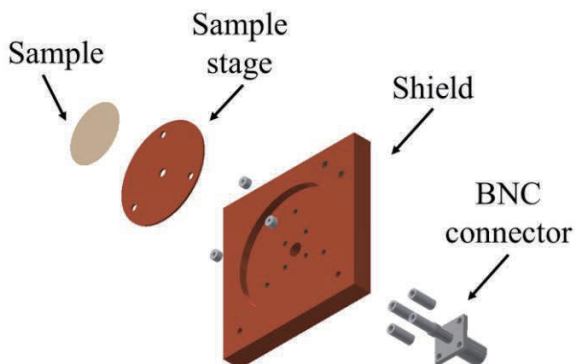


Fig. 3 Sample stage (3D model)

サンプルは、厚さ 1 mm の無酸素銅板 (JIS:C1020)製サンプルステージに取り付けられる。サンプルステージは、断熱材を介して無酸素銅 (JIS:C1020)製低温シールドに装着される。漏れ電流を計測する BNC 端子も備えている。サンプルステージと冷凍機を接続するサーマルアンカーには、アース用銅線の被覆を剥がしたものを使用し熱伝導により冷却を行う。真空チャンバ内の様子を Fig. 4 に示す。

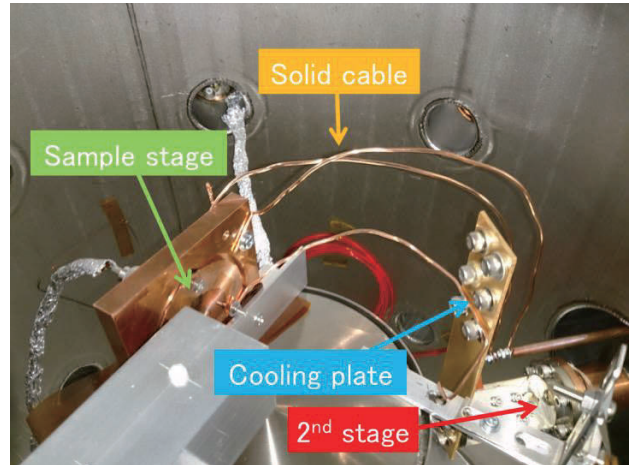


Fig. 4 Sample stage

真空中において冷凍機を起動し、サンプルステージの冷却試験を行った。その結果を Fig. 5 に示す。冷却試験の結果、冷凍機起動後 70 min で最低温度に到達することを確認した。到達温度は季節(冷却水温)によって多少変動する。真夏日の水温 32 度、冷却水流量 120 % の環境下でも 22 K 台に到達する。冷却水の水温が規定値(28 度以下)であれば 20 K 台に到達する。

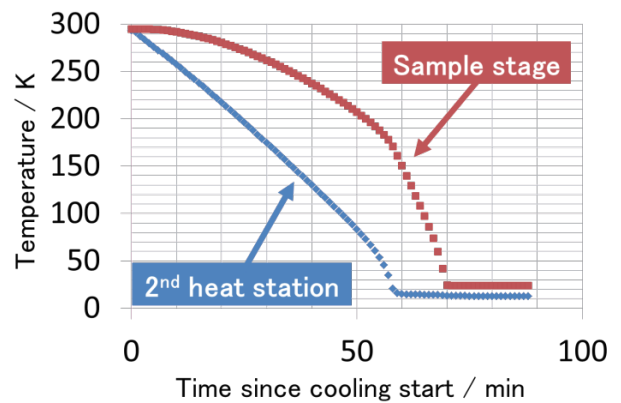


Fig. 5 Time history of sample stage temperature (cooling)

6 低温下における表面電位履歴計測実験

Table 2 に、実験条件を示す。

Table 2 Experimental conditions

Sample (Thickness)	Kapton <sup>®</sup> 200H (50 μm)
Electron beam energy, keV	20
Current density, nA/cm <sup>2</sup>	1.14
Irradiation time, s	60
Vacuum level, Pa	10 <sup>-5</sup> ~ 10 <sup>-6</sup>
Temperature, K	20 / 40 / 60 / 100 / 150

Fig. 6 に、表面電位履歴計測結果を示す。

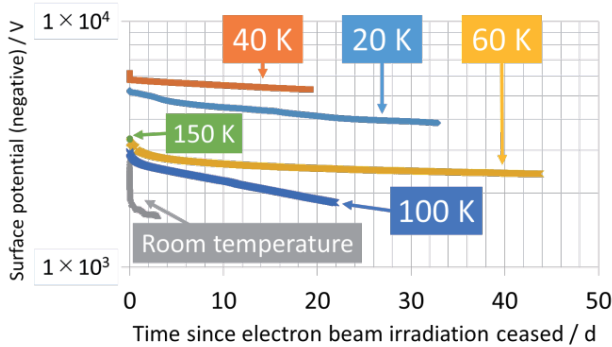


Fig. 6 Time history of surface potential (semi-log plot)

Fig. 6 の横軸は電子線照射終了後からの経過日数で、縦軸は表面電位の絶対値を対数で表示したものである。電子線を照射しているため、実際の電位は負である。Fig. 6 中の Room temperature は、先行研究で温度以外の条件が最も近い実験結果を比較対象として記載した[8]。

20 K, 40 K, 60 K, 100 K における表面電位履歴は、kV オーダーの電位を数日にわたって維持しており、Room temperature と比較して減衰が小さいことがわかる。特に、60 K の実験においては40 日以上経過しても-2 kV 以上まで減衰することはなかった。150 K については、計測時間が353 s と短かったため、Fig. 6 の横軸のスケールでは変化が見にくくなっている。また、この研究においては計測開始初期の電位の変化が重要となるが、Fig. 6 では初期の変化が見にくい。そのため、Fig. 7 に時間軸を対数にしたグラフを示す。

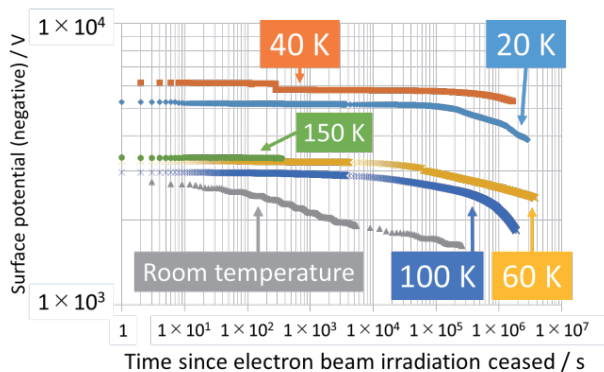


Fig. 7 Time history of surface potential (log-log plot)

Fig. 7 を見ると、低温下における計測開始初期の電位の減衰が小さいことがわかる。電子線照射終了後から 1 h までの間に減衰した電位は、Room temperature では 793 V であったが 20 K では 102 V, 40 K では 368 V, 60 K では 31 V, 100 K では 76 V, 150 K では 353 s の間に 20 V の減衰があった。しかし、初期電位は Room temperature が最も大きかった。低温下の初期電位については、温度が下がるほど初期電位が低くなるような傾向が見られた。この実験結果から、低温下では初期電位が負に大きく下がり、電位の減衰は小さくなることがわかった。

誘電体における電荷移動度は、温度が下がるほど小さくなる。試料内に入射した電子が移動し試料外に逃げていく時の移動が遅くなるため、電位の減衰が小さくなったと考えられる。初期電位が Room temperature と比較して低くなったのは、RIC (Radiation Induced Conductivity: 放射線誘起導電率) が関係している可能性がある。Gillespie らの研究によると、100 K における RIC の効果が 300 K におけるものより小さいという結果が得られている(ただし、Kapton<sup>®</sup>E) [9]。もし低温下の方が RIC の効果が小さいならば、導電率の一時的な上昇も小さいということになるため、試料に蓄積した電荷は移動しにくく、一方的に入射電子が蓄積することになる。つまり、低温下の方が初期電位が低く照射終了後の減衰も遅い、ということになる。ただし、先行研究では 100 K を下回る温度における RIC の効果については示されてはおらず、この推測で 100 K 以下の実験結果について説明することは難しい。100 K 以下の RIC の効果についての研究例を引き続き調査していく。

7 体積抵抗率の計算

表面電位履歴に、以下の減衰モデル[7]を適用し、体積抵抗率の計算を行った。

$$V(t) = V_0 e^{-\frac{t}{\tau_d}} \tag{2}$$

$$\rho = \frac{\tau_d}{\epsilon} \tag{3}$$

式(2)及び式(3)の  $V_0$  は初期電位、 $\tau_d$  は減衰時定数、 $\epsilon$  はサンプルの誘電率、 $t$  は経過時間である。式(2)を表面電位履歴に適用すると、減衰時定数がわかる。その減衰時定数を式(3)に代入すると、体積抵抗率が計算できる。体積抵抗率計算結果を Fig. 8 に示す。

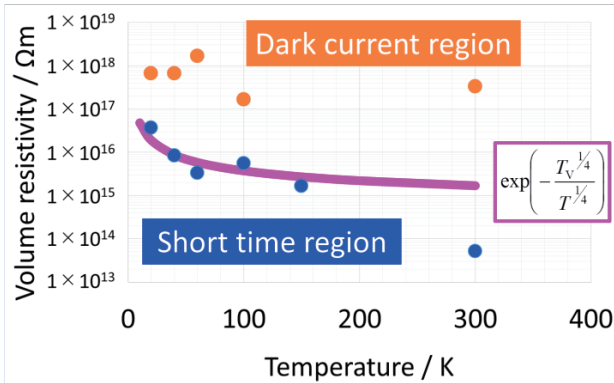


Fig. 8 Volume resistivity as function of temperature  
(Kapton® 200H)

※Room temperature のデータは、論文中に温度の記載がなく不明であるため、ここでは300 Kとした。

短時間領域においては、Room temperature と比較して体積抵抗率が桁違いに上昇した。表面電位履歴の初期の傾きが小さいため、減衰時定数が大きくなり体積抵抗率も大きくなった。オーダーとしては、 $10^{15}\sim 10^{16}$  Ωmであった。短時間領域に記載している曲線は、先行研究で示されていた理論式を基に作成したものである。パラメータ  $T_V$  は11604 Kとした[10]。短時間領域における体積抵抗率は、室温における結果以外において、この曲線と似た傾向にある。

長時間領域については、それぞれの温度の短時間領域の体積抵抗率よりも1桁~2桁高い値であった。しかし、低温下における長時間領域の体積抵抗率は、理論式と一致するような傾向は見られなかった。この原因として、表面電位履歴の計測時間の不足が考えられる。まだ暗電流領域に達していない段階で計測を終了したため、実際に暗電流領域に達した後体積抵抗率を計算したとすれば、Fig. 8よりも更に大きい値になると考えられる。実験を中断した理由として、実験棟の停電や断水などといった施設管理やメンテナンスが原因である。

## 8 広範囲ホッピングモデル

電子が遠い準位へホッピングすることは、波動関数の重なりが小さいため困難である。低温でなければフォノン効果によりエネルギーを受け取り移動することができるが、低温ではエネルギーを受け取り移動することは困難となる。そうすると、結局は遠い準位へホッピングする方が有利になることがある。これが広範囲ホッピングの前提条件となっている[11][12]。

広範囲ホッピングの移動度と温度の関係を式(4)に、移動度と体積抵抗率の関係を式(5)に示す。

$$\mu \propto \exp\left(-BT^{-\frac{1}{4}}\right) \quad (4)$$

$$\rho = \frac{1}{ne\mu} \quad (5)$$

式(4)の  $\mu$  は移動度、 $T$  は温度、式(5)の  $n$  は数密度、 $e$  は素電荷を示す。式(4)の形から、 $1/4$  乗則とも呼ばれている。式(4)中のパラメータ  $B$  は、式(6)及び式(7)で示される[12]。

$$B = B_0 \left\{ \frac{\alpha^3}{kN(E_F)} \right\}^{\frac{1}{4}} \quad (6)$$

$$B_0 = 2 \left( \frac{3}{2\pi} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (7)$$

式(6)の  $k$  はボルツマン定数、 $\alpha$  はトンネル係数、 $N(E_F)$  は局在準位の密度を示す。現状では、 $\alpha$  と  $N(E_F)$  がわからないため、これらのパラメータを求める方法を現在調査中である。これらのパラメータがわかれば、理論的に低温下における体積抵抗率がわかる可能性があると考えている。

## 9 電子線照射中の試料の温度上昇

試料裏面に温度センサを装着しており、電子線照射中でもノイズ等の影響を受けずに温度計測ができるようになったが、電子線照射中の温度上昇は観測できなかった。理由として、試料表面は温度上昇しているが試料裏面まで熱が伝わっていないことや、一定温度になるように制御しているために発熱した分冷凍能力を上昇させていることが考えられる。

電子線の照射により試料がどれくらい温度上昇するかを、簡単な式で計算した。前提条件として、試料表面  $1 \text{ cm}^2$  の面積で考え、 $20 \text{ keV}$ 、 $1 \text{ nA/cm}^2$ 、 $60 \text{ s}$  連続照射の電子線が全て熱に変換され、その熱が試料の温度上昇に全て使われ、放熱は一切考えない。この計算で問題になるのは、試料がどの深さで最も多くのエネルギーを落としているのかの見積もりである。この見積もり次第で温度上昇する体積が変わってくるため、温度上昇量も変わってくる。ここでは、エネルギー分布のシミュレーション結果を参考にした[13]。

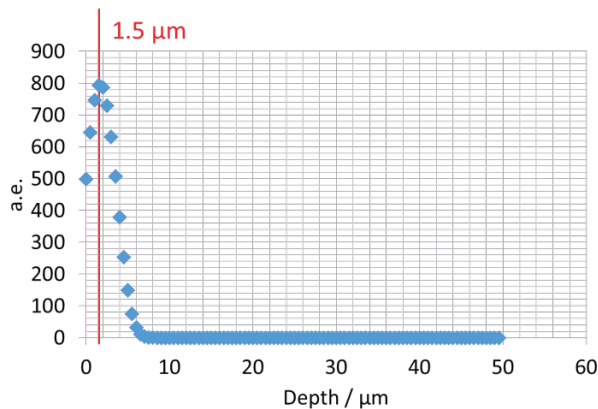


Fig. 9 Energy spectrum of Kapton®200H (20 keV, 1nA/cm<sup>2</sup>)

Fig. 9 のエネルギー分布のシミュレーション結果を見ると、試料深さ 1.5 μm の地点で最も多くのエネルギーを落としている。よって、面積 1 cm<sup>2</sup>、深さ 1.5 μm の体積で計算を行う。

電子ビームが持つ電力は、

$$20 \times 10^3 \times 1 \times 10^{-9} = 2 \times 10^{-5}$$

照射時間 60 s で、電力が全て熱に変換されたとすると、

$$2 \times 10^{-5} \times 60 = 1.2 \times 10^{-3}$$

となる。1.2 × 10<sup>-3</sup> J の熱が全て温度上昇に使われたとして、温度上昇量を計算する。Kapton®200H の密度を 1.42 g/cm<sup>3</sup>、比熱を 1.1 J/(g・K) とする[14]。

$$\Delta T = \frac{1.2 \times 10^{-3}}{0.000213 \times 1.1} = 5.1$$

放熱を一切考えていない、温度上昇が高く見積もられる条件でも温度上昇は 5.1 K であり、実際はこれ以上の温度上昇はないと考えられる。FEM を用いたシミュレーション等で、放熱を考慮した温度上昇の計算が可能であると考えており、今後進めていく予定である。

## 10 まとめ

- 既存のチャンバに低温機器を導入し、最低温度 20 K までサンプルを冷却できるシステムを構築した。
- 低温下では、常温と比較して表面電位が負に大きく下がり、減衰しにくい状態となることがわかった。
- 短時間領域における体積抵抗率は、1/4 乗則とよく似た傾向を見ることができた。
- 広範囲ホッピングの式の中にある、トンネル係数と局在準位の密度を求める方法を調査している。
- 試料の温度上昇と温度分布を、FEM を用いてシミュレーションする予定である。

## 11 参考文献

- [1]. T. Muranaka, et. al., IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 36, No. 5, 2008.
- [2]. J. I. Minow, et. al., 45th AIAA Aerospace Science Meeting, 2007.
- [3]. 櫻井和也, 平成 23 年度東京都市大学修士論文.
- [4]. James Webb Space Telescope Official Site, <http://jwst.nasa.gov/>
- [5]. J. Arenberg, et. al., Space Telescope and Instrumentation 2016, Proc. of SPIE Vol. 9904 990405-1, 2016.
- [6]. 次世代赤外線天文衛星 SPICA, [http://www.ir.isas.jaxa.jp/SPICA/SPICA\\_HP/index.html](http://www.ir.isas.jaxa.jp/SPICA/SPICA_HP/index.html)
- [7]. A.R.Frederickson, et. al., IEEE Transaction on Nuclear Science, Vol.50, No.6, pp.2284-2291, 2003.
- [8]. 八幡雅寿, 平成 26 年度東京都市大学卒業論文.
- [9]. J.C.Gillespie, Utah State University Graduate Theses, 2013.
- [10]. D. C. Ferguson, et. al., International Conference on Space Technology, 2009.
- [11]. 大木義路 編著, “誘電体物性”, 培風館, 2006.
- [12]. Mott and Davis, “Electronic Processes in Non-Crystalline Materials Second Edition”, 1979.
- [13]. 菅原洋平, 平成 27 年度東京都市大学卒業論文.
- [14]. 東レ・デュポン株式会社 HP, [http://www.td-net.co.jp/kapton/sort/hv\\_type/index.html](http://www.td-net.co.jp/kapton/sort/hv_type/index.html)