

電荷蓄積法による誘電体体積抵抗率における パラメータ依存性について

○櫻井和也, 渡邊力夫, 三宅弘晃(東京都市大学), 仁田工美(JAXA)

Experimental Parameter Dependency on Dielectric Volume Resistivity in Charge storage method
Kazuya Sakurai and Rikio Watanabe, Hiroaki Miyake (Tokyo City University), Kumi Nitta (JAXA)

Key Words: Dielectrics, Spacecraft Charging, Volume resistivity, Charge storage method

Abstract

For determination of dielectric volume resistivity under space environment, it is important to understand the effect of test parameters such as electron energy and sample temperature. In this paper, the effect of sample thickness, electron irradiation energy and temperature on volume resistivity is analyzed by the charge storage method. The dielectric material considered here is typical polyimide (Kapton[®]) film. The experimental results indicate that higher electron energy and thinner sample thickness show lower resistivity. Higher temperature also exhibits lower resistivity according to the Boltzmann type resistivity decrease.

1. 研究背景

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。体積抵抗率とは単位体積当たりの電流の流れ難さであり、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こり、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、JIS²⁾やASTM³⁾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ない可能性があり、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。

また、電子線照射エネルギー(電子の最大飛程に影響)、フラックス(線量率に影響)、照射時間(全線量に影響)、試料厚さ(試料内部に形成される電界強度に影響)、試料温度(電荷移動度に影響)、湿度(大気中で影響)など体積抵抗率に影響を及ぼす可能性があるパラメータが多数考えられる。しかしながら、これらの影響はこれまでの論文や報告等で十分には議論されておらず、材料物性値計測手法としての更なる検討が必要である。

温度に関しては、宇宙機は低軌道上で $-150^\circ\text{C} \sim +120^\circ\text{C}$ の温度下に曝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ため⁵⁾、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荷移動度が上昇し、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。

2. 研究目的

電荷蓄積法によりポリイミドフィルムに対する体積抵抗率を計測し、従来法であるコンデンサ法による計測結果との比較を行う。また、電子線照射エネルギーとの関係や温度との関係についても検討を行い、体積抵抗率に与える影響を明らかにすることを目的とする。

3. 電荷蓄積法による体積抵抗率

3.1. 暗電流領域における体積抵抗率

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、以下のような式が適用できる⁷⁾。

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

式(1)中の $\tau_d[s]$ が減衰時定数であり、式(2)で表される。

$$\tau_d[s] = \varepsilon/\sigma \quad (2)$$

式(2)より、実験で取得できる $\tau_d[s]$ を代入することで導電率 $\sigma[1/\Omega m]$ を求めることができる。ここで、 $\varepsilon[F/m]$ は試料の誘電率である。また、体積抵抗率 $\rho[\Omega m]$ は式(3)のように表すことができる。

$$\rho = 1/\sigma \quad (3)$$

ここで減衰時定数 $\tau_d[s]$ は、式(2)、式(3)より式(4)で表せる。 $\varepsilon_0[F/m]$ は真空の誘電率であり、 ε_r は誘電体の比誘電率である。

$$\tau_d = \rho\varepsilon = \rho\varepsilon_0\varepsilon_r \quad (4)$$

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。

3.2. 短時間領域における体積抵抗率

電子線照射終了直後は分極電流が支配的となる。分極の形成による電界緩和に要する時間は数分から数時間であり、材料の物性値(特に比誘電率)によって異なる。したがって、宇宙機において重要な数時間から1日単位の電位変動については、この影響が支配的であるといえる。分極が支配的な時間域における体積抵抗率を Dennison らが考案した次式の電位減衰モデルから求めることができる⁷⁾。

$$V = V_0[\varepsilon_r^\infty + (1 - \varepsilon_r^\infty)e^{-t/\tau_p}]^{-1} \quad (5)$$

式(5)の電位減衰モデルにおいて、分極電流時定数 τ_p と分極電流終了時の比誘電率 ε_r^∞ をパラメータとして実験で得られた表面電位の時間変化にあわせ、これら2つのパラメータから体積抵抗率を求めることができる。

4. 体積抵抗率の温度依存性⁸⁾

誘電体の活性化エネルギー $U[J]$ 、ボルツマン定数を $k[J/K]$ とすると、温度 $T[K]$ における体積抵抗率 ρ は、

$$\rho(T) \propto \exp(U/kT) \quad (6)$$

と表せる。

5. 計測システム

5.1. 体積抵抗率計測システム

Fig.1 に体積抵抗率計測システムを示す。体積抵抗率計測システムは、表面電位計(Trek 製, Model 341B)、表面電位計測プローブ(Trek 製, Model3453ST)、オシロスコープ(Tektronix 製, DPO7104)、ファンクションジェネレータ(Tektronix 製, AFG3021B)、微小電流計(Keithley 製, 428)、真空チャンバ(内径 400mm, 到達圧力 10^{-6} Pa)、電子銃(日本ビーテック製, 50keV)、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(VG シエンタ製, ストローク 150mm)で構成されている。温度制御システムは、ペルチェ素子(フジタカ製, FPM-71008, 温度範囲 $-40^\circ\text{C} \sim 80^\circ\text{C}$)、ペルチェコントローラ(フジタカ製, T-009-406Pt)、白金測温抵抗体(Heraeus 製, M222-A)、水冷ヒートシンク、冷却水循環装置(東京理化器械製, CCA-1111)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。

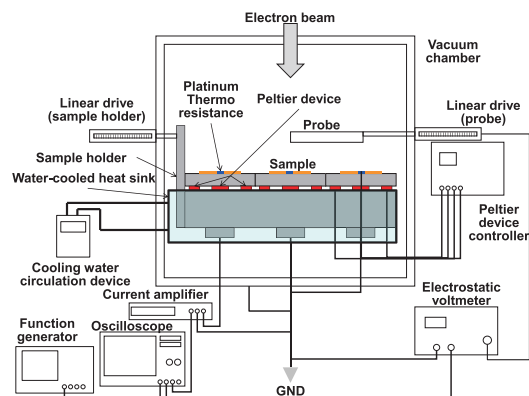


Fig.1 Measurement systems of volume resistivity

5.2. 試料台

Fig.2 に試料台を示す。Fig.2 において計測時は試料が試料カバーで固定されている状態(1 番左)にある。1 番右の試料台は、試料台の断面でカットした形になっており、真ん中は、試料カバーを付けていない状態になっている。また、電子線照射位置やプローブの位置までリニアドライブを使用して左右に移動することが可能である。

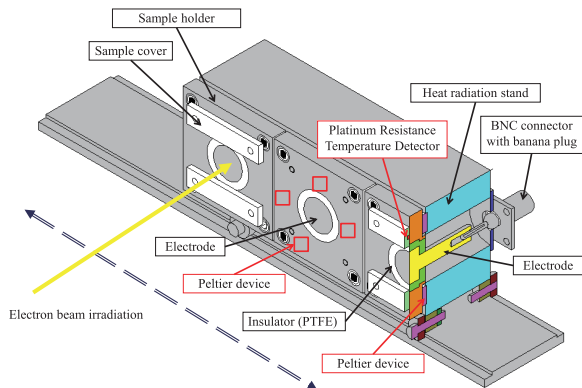


Fig.2 Sample holder

5.3. 温度制御システム

温度制御を行うために、試料台と放熱台の間に対角に 4 つのペルチェ素子が配置されている。温度制御点は、白金測温抵抗体すなわち試料カバー直下の試料表面温度である。

ペルチェコントローラの目標温度設定後に温度制御を開始すると、白金測温抵抗体で試料温度は計測される。その後、ペルチェコントローラで PID 制御により、ペルチェ素子の温度を目標温度に制御し、試料温度が変化するようにしている。

また、冷却を行う場合は、放熱台の上に水冷ヒートシンクをセットし、冷却水循環装置を使用して排熱処理を行っている。

6. 体積抵抗率計測実験

6.1. 電子線照射エネルギーを変化させた場合の体積抵抗率 [試料厚さ 25 μ m]

6.1.1. 実験条件

試料は、ポリイミドフィルムである東レ・デュポン社製の試料厚さ 25 μ m の Kapton®100H を用いた。電子線照射エネルギーを 10keV から 30keV まで変化させて、3 つの場合で計測を行った。実験条件を Table 1 に示す。

Table 1 Experimental conditions [25 μ m]

Sample	Kapton®100H		
Sample thickness [μ m]	25		
Electron beam irradiation energy [keV]	10	20	30
Current density [nA/mm ²]	337	650	1039
Irradiation time [s]	60		
Vacuum level [Pa]	10 ⁻⁴		
Measurement time [h]	336		

6.1.2. 実験結果及び考察

試料厚さ 25 μ m における表面電位の時間履歴を Fig.3 及び Fig.4 に示す。Fig.3 は、両軸とも線形のグラフであり、Fig.4 は、Fig.3 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。

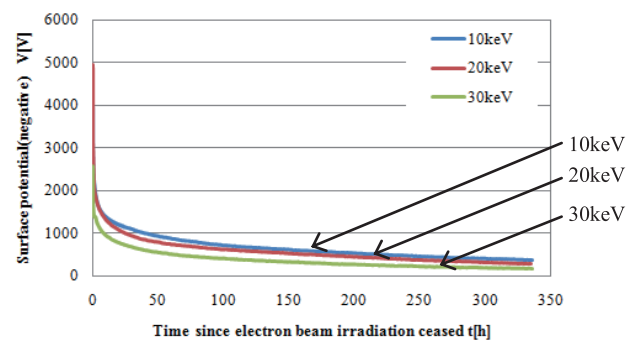


Fig.3 Time history of surface potential [25 μ m]
(Linear plot)

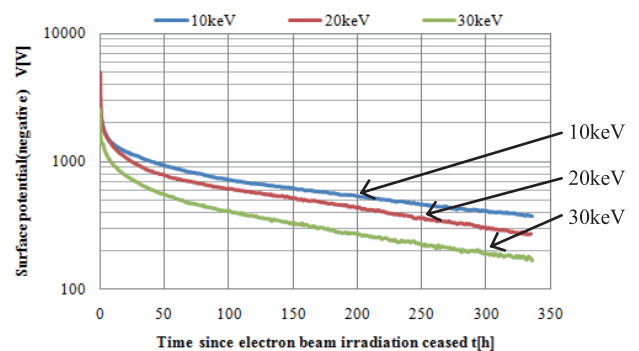


Fig.4 Time history of surface potential [25 μ m]
(Single-logarithmic plot)

電子線照射直後の試料の表面電位は、10keV の場合は-3950V、20keV の場合は-4954V、30keV の場合は-2573V 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ている(表面電位は上昇している)。10keV の場合で約 240s、20keV の場合で約 69s、30keV の場合で約 1356s 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。また、電子線照射エネルギーが上昇するにつれて、電位減衰量及び電位減衰速

度が大きくなっている。

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、式(1)の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、短時間領域においても、式(5)の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 2 に試料厚さ 25 μm における体積抵抗率を示す。

Table 2 Comparison of volume resistivity [25 μm]

Electron energy [keV]	Volume resistivity [Ωm]	
	Dark current	Short time
10	4.3×10^{16}	1.3×10^{13}
20	3.4×10^{16}	1.2×10^{13}
30	3.3×10^{16}	1.7×10^{13}

Table 2 より、暗電流領域の体積抵抗率は、 $10^{16}\Omega\text{m}$ オーダーの体積抵抗率を示している。また、10keV では、他の 2 つの場合と比較して、高い値の体積抵抗率が得られた。このことから、電子線照射エネルギーが上昇するにつれて、体積抵抗率は減少し、体積抵抗率の逆数である導電率は増加したことがわかる。参考までに、JIS で規定された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⁹⁾。コンデンサ法と比較すると、約 1 桁大きい値となっている。

短時間領域では、 $10^{13}\Omega\text{m}$ オーダーの値を示しており、コンデンサ法と比較すると、約 2 桁小さい値の体積抵抗率が得られた。また、電子線照射エネルギーによる大きな変化は顕著に表れていない。短時間領域の表面電位変動は、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、電子線照射エネルギーの影響が体積抵抗率という観点では、表れないと考える。

体積抵抗率(導電率)に電子線照射エネルギーとの関係が与える影響として、電子の最大飛程も考慮する必要がある。電子線照射エネルギーと電子の最大飛程の関係は次式のフェザースの式で表される¹⁰⁾。

$$R = 0.407/\rho \times E^{1.38} \quad (7)$$

ここで $R[\text{cm}]$ は電子の最大飛程、 $E[\text{MeV}]$ は電子線照射エネルギー、 $\rho[\text{g}/\text{cm}^3]$ は試料密度 (Kapton[®] 1.42) である。式(7)より算出したポリイミドフィルムにおける電子線照射エネルギーと電子の最大飛程の関係を Table 3 に示す。

Table 3 Theoretical estimation of electron range

Electron energy [keV]	10	20	30	40
Electron range [μm]	5	13	23	34

Table 3 より、試料厚さ 25 μm において電子線照射エネルギー 30keV の場合では、電子が試料の 92% まで飛程する。電子線照射された誘電体中の導電率は、放射線誘起導電率の影響が大きく、電子が通過した部分の導電率は増加することが知られている¹¹⁾。そのため、電子の飛程が深くなるにしたがって、導電率が増加し、体積抵抗率は減少したということが考えられる。また、対向電極との距離が短くなったことにより電界強調も加わり、体積抵抗率の減少(導電率の増加)が起こっているということが考えられる。

6.2. 電子線照射エネルギーを変化させた場合の体積抵抗率 [試料厚さ 50 μm]

6.2.1. 実験条件

Table 3 より、試料厚さ 25 μm では、電子線照射エネルギー 30keV までしか照射できない。そのため、より広範囲での電子線照射エネルギーの影響を調べるために試料厚さ 50 μm の Kapton[®] 200H を用いた。電子線照射エネルギーを 10keV から 40keV まで変化させて、4 つの場合で計測を行った。実験条件を Table 4 に示す。

Table 4 Experimental conditions [50 μm]

Sample	Kapton [®] 200H			
	50			
Sample thickness [μm]	10	20	30	40
Electron beam irradiation energy [keV]	337	650	1039	1405
Current density [nA/mm^2]	60			
Irradiation time [s]	60			
Vacuum level [Pa]	10^{-5}			
Measurement time [h]	168			

6.2.2. 実験結果及び考察

試料厚さ 50 μm における表面電位の時間履歴を Fig.5 に示す。

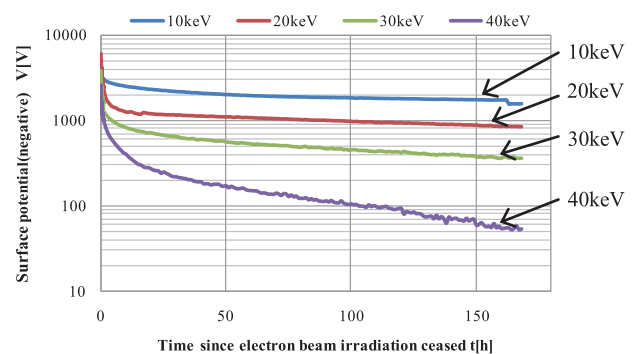


Fig.5 Time history of surface potential [50 μm]
(Single-logarithmic plot)

電子線照射直後の試料の表面電位は、10keV の場合は-3925V、20keV の場合は-5975V、30keV の場合は-3586V、40keV の場合は-2606V である。4 つの場合とも、電子線照射終了後に表面電位の絶対値が急速に減衰 (表面電位は上昇) して、その後、緩やかに

減衰している。また、試料厚さを変えても電子線照射エネルギーが上昇するにつれて、電位減衰量及び電位減衰速度が大きくなっている。Table 5 に試料厚さ 50 μm における体積抵抗率を示す。

Table 5 Comparison of volume resistivity [50 μm]

Electron energy [keV]	Volume resistivity [Ωm]	
	Dark current	Short time
10	1.3×10^{17}	1.9×10^{13}
20	5.6×10^{16}	1.6×10^{13}
30	3.5×10^{16}	1.5×10^{13}
40	1.1×10^{16}	1.4×10^{13}

Table 5 より、暗電流領域において電子線照射エネルギーが上昇するにしたがって、体積抵抗率が $10^{17}\Omega\text{m}$ オーダーから $10^{16}\Omega\text{m}$ オーダーへと約 1 桁の減少を示している。このことから放射線誘起導電率の影響や電界強調の影響が体積抵抗率の減少(導電率の増加)に関係していることがわかる。

短時間領域では、試料厚さ 50 μm でも $10^{13}\Omega\text{m}$ オーダーの値を示しており、コンデンサ法と比較すると、約 2 桁小さい値の体積抵抗率が得られた。また、電子線照射エネルギーによる大きな変化は顕著に表れていない。

6.3. 電子線照射エネルギーとの関係

Fig.6 に体積抵抗率と電子線照射エネルギーとの関係を示す。縦軸は体積抵抗率 $\rho[\Omega\text{m}]$ を示し、横軸は電子線照射エネルギー $E[\text{keV}]$ を示している。

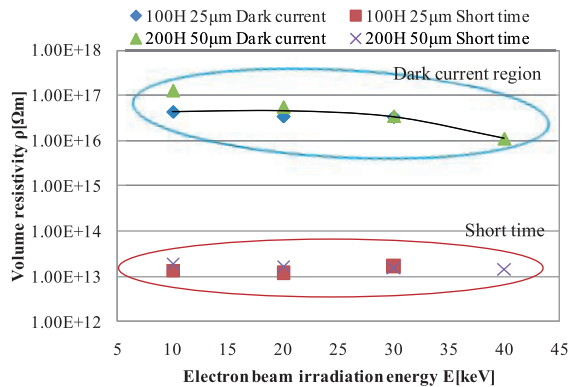


Fig.6 Relation of volume resistivity and Electron energy

Fig.6 より、電子線照射エネルギーの上昇によって暗電流領域での体積抵抗率は減少していく。しかし、短時間領域の体積抵抗率は、電子線照射エネルギーの大きさに影響されず一定の値を示している。コンデンサ法と比較すると、暗電流領域では約 1 桁大きい値となり、短時間領域では約 2 桁小さい値の体積抵抗率が得られた。短時間領域における体積抵抗率では、試料表面の電界の緩和時間を過小評価してし

もう可能性があるため、コンデンサ法あるいは暗電流領域における体積抵抗率を使用すべきである。

また、電子線照射エネルギーは、試料厚さと密接に関係しており、放射線誘起導電率の影響や電界強調の影響を含めてより検討を行っていかなければならない。

6.4. 温度変化させた場合の体積抵抗率

6.4.1. 実験条件

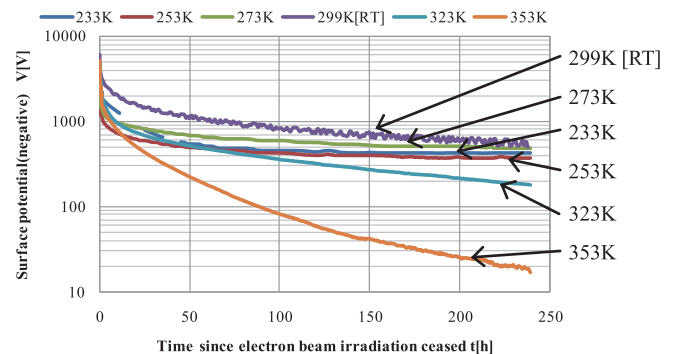
次に、試料厚さ 50 μm の Kapton[®]200H を用いて、温度の影響を調べた。ペルチェコントローラの温度設定を 233K(-40°C)から 353K(80°C)と温度を変化させて、299K[RT]を含めて 6 つの場合で計測を行った。実験条件を Table 5 に示す。

Table 5 Experimental conditions [Temperature]

Temperature setting [K]	233	253	273	299[RT]	323	353
Sample	Kapton [®] 200H					
Sample thickness [μm]	50					
Electron beam irradiation energy [keV]	20					
Current density [$\mu\text{A}/\text{mm}^2$]	650					
Irradiation time [s]	60					
Vacuum level [Pa]	10^{-6}					
Measurement time [h]	240					

6.4.2. 実験結果及び考察

温度変化させた場合の表面電位の時間履歴を Fig.7 に示す。

Fig.7 Time history of surface potential [Temperature]
(Single-logarithmic plot)

電子線照射直後の試料の表面電位は、233K の場合は -3272V、253K の場合は -3516V、273K の場合は -3390V、299K[RT]の場合は -6145V、323K の場合は -4999V、353K の場合は -5200V である。温度変化させた場合でも、6 つの場合とも電子線照射終了後に表面電位の絶対値が急速に減衰(表面電位は上昇)して、その後、緩やかに減衰している。また、温度設定が高いほど電荷移動度が高くなるために減衰が速く、温度設定が低い場合は電荷移動度が低いいため、緩やかに減衰している。Table 6 に温度変化させた場合の体積抵抗率を示す。

Table 6 Comparison of volume resistivity [Temperature]

Temperature [K]	Volume resistivity [Ωm]	
	Dark current	Short time
233	3.3×10^{17}	3.3×10^{12}
253	1.1×10^{17}	5.5×10^{10}
273	8.3×10^{16}	1.1×10^{13}
299 [RT]	4.2×10^{16}	1.7×10^{13}
323	3.3×10^{16}	1.3×10^{13}
353	1.1×10^{16}	3.5×10^{12}

Table 7 より, 暗電流領域において温度が上昇するにしたがって, 体積抵抗率が $10^{17}\Omega\text{m}$ オーダーから $10^{16}\Omega\text{m}$ オーダーへと約 1 桁の減少を示している. コンデンサ法と比較すると, 約 1 桁から 2 桁大きい値となっている. また, 温度が上昇するにつれて, 体積抵抗率が減少していることがわかる.

短時間領域では, $10^{13}\Omega\text{m}$ オーダーに近い値を示している. 電子線照射エネルギーの影響と同様に温度による大きな変化は顕著に表れていない.

次に, Fig.8 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 $T[\text{K}]$ を示している.

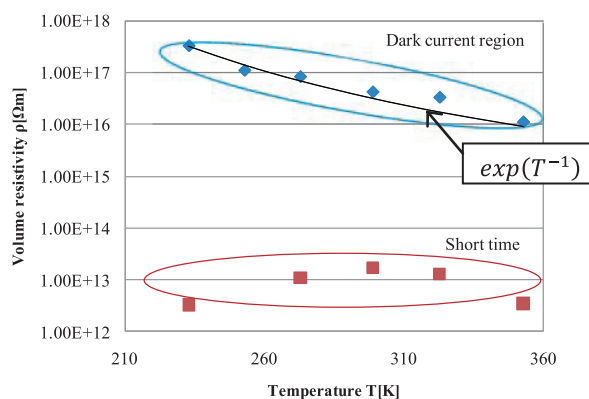


Fig.8 Relation of volume resistivity and temperature

Fig.8 の暗電流領域において, 式(6)を適用した. 実際に宇宙機が使用される温度範囲より狭い範囲ではあるが, $\exp(T^{-1})$ に比例して, 暗電流領域の体積抵抗率が減少していることがわかる.

7. 結論

電荷蓄積法によりポリイミドフィルムに対する体積抵抗率を計測した. 電子線照射エネルギーが上昇するにつれて, 電位減衰量及び電位減衰速度が大きくなっていることがわかった. また, コンデンサ法での体積抵抗率($1.0 \times 10^{15}\Omega\text{m}$)と比較すると, 電子線照射エネルギーを変化させた場合の体積抵抗率は, 暗電流領域では約 1 桁大きい値となり, 短時間領域

では約 2 桁小さい値の体積抵抗率が得られた. 短時間領域における体積抵抗率では, 試料表面の電界の緩和時間を過小評価してしまう可能性があるため, コンデンサ法あるいは暗電流領域における体積抵抗率を使用すべきである.

温度を変化させた場合の体積抵抗率は, 暗電流領域では, $10^{17}\Omega\text{m}$ あるいは $10^{16}\Omega\text{m}$ 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. また, コンデンサ法と比較すると, 約 1 桁から 2 桁大きい値であった. 短時間領域では, $10^{13}\Omega\text{m}$ オーダーに近い値を示し, 温度による大きな変化は顕著に表れなかった. 狭い温度範囲ではあるが, $\exp(T^{-1})$ に比例して, 暗電流領域の体積抵抗率が減少していることがわかった.

今後は, ペルチェ素子では温度範囲に限界があるため, 熱力学的な装置の導入や他の試料(銀蒸着テフロンやカバーガラスなど), 電子線照射エネルギー, 試料厚さ, 温度など変えて計測を行う. なお, 本研究の一部は, 科研費(21760655)の助成により実施した.

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, J.R. Dennison: IEEE TRANSACTION ON NUCLEAR SCIENCE, VOL.50, No.6, pp.2284-2291, 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) J.R. Dennison et al.: PROPOSED MODIFICATIONS TO ENGINEERING DESIGN GUIDELINES RELATED TO RESISTIVITY MEASUREMENTS AND SPACWCRAFT CHARGING, 9th Spacecraft Charging Technology Conference, 2005.
- 8) Joseph I. Minow, Linda N. Parker: Spacecraft Charging in Low Temperature Environments, 45th AIAA Aerospace Sciences Meeting 19, pp. 13214-13223, 2007.
- 9) 東レ・デュポン株式会社カプトン®総合カタログ
- 10) 多田順一郎: わかりやすい放射線物理学, オーム社, pp.104-109, 2007.
- 11) B. Gross: Radiation-induced Charge Storage and Polarization Effects, in :G.M. Sessler (Ed.), Electrets, Springer, Berlin, 1980.