薄膜絶縁体の絶縁破壊試験の自動化と 自己回復性破壊の条件

正員 北川 恵一 (岐阜高専)

正員 沢 五郎 (三重大)

正員 家田 正之 (名古屋大)

1. ま え が き

代表的な高分子材料であるポリエチレン (PE) は、電気絶縁材料として広く利用され、その絶縁破壊機構も次第に明らかにされてきた。しかし、絶縁破壊特性に与える高次構造の影響に関しては不明な点が多い。例えば、絶縁破壊が球晶内の結晶領域に支配されるのか、あるいは球晶間の非晶質からなる境界領域に支配されるのかについては、議論が多い。例えば、一方では PE と同じ分子構造をもつヘキサトリアコンタン ($C_{36}H_{74}$) の単結晶の絶縁破壊の強さは、通常の PE に対する値よりも低いことが報告され⁽¹⁾、他方ではトリイニング破壊における破壊経路は、球晶間の境界に沿って進展することが報告されている⁽²⁾。絶縁破壊の実験に用いられる試料においては、通常、電極間の厚さ方向に球晶とその境界とが複雑に分布し、高次構造と絶縁破壊との関係の解析を困難にしている。著者らは、溶液法で作成した PE 薄膜を熱処理することによって大きな二次元球晶が生成することを利用し、球晶内と境界の絶縁破壊特性を分離して検討することを試みている⁽³⁾⁽⁴⁾。

以上のように薄膜絶縁体の利用は、絶縁破壊と固体構造との関係を明らかにするための一つの方法として

有用と考えられる。このほかに薄膜の利用は、絶縁破壊の研究において次のような利点を有している。すなわち、自己回復性破壊を用いると、同一試料について多数回の破壊試験を行なうことができることである。自己回復性破壊によって、まず第1に試料の破壊に対する弱点が除去できる。第2に同一試料について異なった試験条件下の試験ができることである。特に、高分子の固体構造は、試料の調整時の条件のささいな変動に影響されるので、一定の固体構造の多数個の試料を準備することは不可能に近い。最後に、本来絶縁破壊の強さは、統計的にばらつき、かつ元来絶縁体の種類および試験条件を変えたとき、絶縁破壊の強さは MV/cm のけたの中で変化するだけであり、その変化は絶縁抵抗などの変化に比べて小さく、ばらつきの範囲内にとどまることも少なくない。従って、多数のデータを収集し、それを統計的に検討する必要がある。この点においても自己回復性破壊は有用である。このような薄膜の自己回復性破壊を絶縁破壊試験に有効に利用するためには、自己回復が生ずる条件を明確にすることと測定自動化が必要である。

本論文では、まずマイクロコンピュータを導入して絶縁破壊試験装置を制御し、更にデータ処理を行ない、絶縁破壊試験およびそのデータ処理を自動化する手法について述べる。次に、自己回復性破壊を行なわせるための試験条件について検討した結果について述べる。

前に著者らは、破壊こん跡の形状を検討し、絶縁薄膜の破壊孔の周りに円環状に上部電極が蒸発した形が、自己回復に適していることを見いだした。更に、ジュール加熱とアーク放電による陽極加熱とを考慮し、

Automation of Dielectric Breakdown Test on Thin Film and Condition for Attaining the Self-healing Breakdown. By Keiichi Kitagawa, Member (Department of Electrical Engineering, Gifu Technical College), Goro Sawa, Member (Department of Electronic Engineering, Faculty of Engineering, Mie University) & Masayuki Ieda, Member (Department of Electrical Engineering, Faculty of Engineering, Nagoya University).

北川恵一: 正員, 岐阜工業高等専門学校電気工学科

沢 五郎: 正員, 三重大学工学部電子工学科

家田正之: 正員, 名古屋大学工学部電気工学科

て自己回復に好ましい条件として、

(i) 上部蒸着電極の厚さが下部蒸着電極のそれより薄く、

(ii) 下部が陰極となる極性の電圧を印加すること、を報告した⁽⁵⁾。PE 薄膜は熱処理により球晶が生成するが、熱処理前には球晶がなくラメラが無秩序に配向した構造をもつ。これらの絶縁破壊特性を比較検討するため、前に述べた自己回復に好ましい条件下で試験を行なった結果、熱処理後では上部電極が円環状に蒸発した期待どおりの形の破壊こん跡が得られたが、熱処理前では上部電極が斑点状リングの形で蒸発し、電極間の絶縁が十分回復していないことが見いだされた。本論文では、この斑点状リングの生成原因を検討し、上部電極が円環状に蒸発した形の場合の絶縁回復の状態にできるだけ近くなるための条件を明らかにした。

2. 絶縁破壊試験の自動化とデータ処理

著者らが開発した自己回復性破壊実験の制御計測システムの構成図を図1に示す。以下に装置の動作の概略を述べる。試料に電圧印加を命令するパルス信号は、マイクロコンピュータ（マイコン）に内蔵されているインターフェイスⅠを通して発振器へ入力されると同時に、オシロスコープへ入力し単掃引を開始する。発振器により発生した単発の直線状上昇電圧（ランプ波電圧）を増幅して、それを試料に印加して絶縁破壊試験を行なう。絶縁破壊発生直後、増幅器に内蔵されたサイラトロン（2D 21）により印加電圧を速やかに除去すると共に、印加電圧の最大値すなわち絶縁破壊電圧（ V_B ）をピーク電圧計に保持する。その後、ピーク電圧計の指示値をインターフェイスⅠを通してマイコンに入力し、ピーク電圧計をゼロクリアする。

以上の過程を電圧印加の所定の時間間隔（ T ）で所定の回数（ N ）繰返した後、ディスプレイ上に図2に例示するような E_B-N 特性を表示する。なお、実際には電圧印加回数を示す横軸は、ディスプレイの一定表示容量の下で、 E_B の変化をできる限り詳しく表示させるため、ここではスケールのみとした。従って、 E_B 、 N および横軸の数字は後から書き入れたものである。図2(a)は自己回復が良好に行なわれた E_B-N 特性の一例である。これに対して、(b)図は後述するように自己回復が不完全な場合の一例であり、 E_B が極端に小さい点は前報⁽³⁾で述べたように、多くはプロバゲート破壊に対応している。実験者は、 E_B-N 特性のほかに試料の破壊こん跡の光学顕微鏡による観察結果も参考にして自己回復の成否、すなわち実験結果の

図1 絶縁破壊試験の制御計測システムの構成図

Fig. 1. The block diagram of the control and measurement system for the electric breakdown test.

(a) 良好な自己回復の場合の特性例

(b) 自己回復が良好でない場合の特性例

図2 E_B-N 特性の表示の一例

Fig. 2. An example of the display of the E_B-N characteristics.

良否を判定する。良好なデータについて、プリンターに測定条件、 T 、 N 、 V_B 、 E_B のデータと共に E_B-N 特性のグラフを印刷する。更に、これらの諸データはカセットテープまたはインターフェイスⅡを通してディスクに記憶・保存し、データの整理に利用する。

以上の操作手順に従って、自己回復性破壊の手法を用いて絶縁破壊試験およびそのデータ処理を行なうため、次のようなプログラムを作成した。

(1) 本実験装置全体を制御し、データを処理した後、測定結果をグラフ化する。

(2) 別の絶縁破壊装置で得たデータをキーボードから入力し、データ処理した後、測定結果をグラフ化する。

(3) プログラム (1), (2) でカセットテープまたはディスクに保存してあるデータから、必要なデータを最大 6 種類読み出し、グラフ化し比較検討する。

上述したプログラムのうち、プログラム (1) を使用した場合、測定・データ処理および E_b-N 特性のグラフ化に要する時間は、従来の手作業に要した時間に対して、控めに見積っても 1/10 以下となり、実験の能率は著しく向上した。次に、これらの開発した実験手法を用いて薄膜の絶縁破壊の自己回復が生ずる条件に関して検討した結果を述べる。

3. 自己回復性破壊の条件

(3.1) 試料 試料は既に報告した方法⁽³⁾⁽⁴⁾とほとんど同じ方法で作成したが、熱処理前のものである。以下に試料作成法の要点を述べる。濃度 1%wt の高密度ポリエチレンのキシレン溶液を、あらかじめ下部電極として Al を真空蒸着してあるガラス基板上に滴下する。滴下したキシレン溶液は、室温で約 1 日かけてゆっくり蒸発させ、PE 薄膜を作成する。その後、上部電極として Al の真空蒸着を行ない破壊実験用試料を作る。蒸着金属電極の厚さは、蒸着中に試料の近くに設定された別の基板上的蒸着膜の抵抗によって監視して制御された。なお、この抵抗値と金属膜の厚さとの関係は、別に行なった繰返し干渉計による測定結果をもとに求められた。試料の形状は、 $2 \times 2 \text{ mm}^2$ の有効面積をもつ Al-PE-Al のコンデンサ形である。PE の厚さは、比誘電率 2.2 として静電容量から計算して求められた。

(3.2) 実験方法と実験結果 絶縁破壊の実験装置は、前報⁽⁴⁾と同じ装置を用い、それを前述した方法によりマイコンで制御した。大気中、室温で試料に電圧上昇速度 100 V/s のランプ波電圧を、自己回復に好ましい条件の一つ⁽⁵⁾である上部電極が正となる極性で印加した。PE 薄膜を破壊した後の顕微鏡写真の一例を図 3 に示す。ここで上部電極および下部電極の厚さは、それぞれ $300 \text{ \AA}$ および $400 \text{ \AA}$ である。同図(a)において、中心部の黒い部分が破壊孔であり、その周囲の斑点状の白い部分は破壊によって上部電極が蒸発

(a) 熱処理前

(b) 熱処理後

図 3 代表的な破壊こん跡の形態

Fig. 3. Typical examples of breakdown damage pattern.

した部分である。このような破壊形態をとると、次の電圧印加時に絶縁破壊が破壊孔の周囲で生ずる、いわゆるプロパゲート破壊⁽⁶⁾が生ずることが多く、自己回復には好ましくない形態である。ここでは、この白い部分を斑点状リングと呼ぶこととする。(b)図は比較のために示した PE 薄膜の熱処理後の試料を絶縁破壊した場合の破壊こん跡であり、これは自己回復に好ましい形態であり、球晶の境界部分で絶縁破壊していることがよくわかる。

斑点状リングの形態は図 4 および図 5 に示すように、上部電極および下部電極の厚さに依存して変化する。図 4 (a), (b) および (c) は、下部電極の厚さを $600 \text{ \AA}$ 一定としたとき、上部電極の厚さをそれぞれ $100 \text{ \AA}$, $300 \text{ \AA}$ および $400 \text{ \AA}$ にしたときの形態である。上部電極が薄くなるに従い斑点状リングの半径は大きくなる。

図 5 (a) および (b) は、上部電極の厚さを $300 \text{ \AA}$ 一定としたとき、下部電極の厚さをそれぞれ $400 \text{ \AA}$ および $300 \text{ \AA}$ にしたときの形態である。下部電極の厚さが薄くなるに従い斑点状リングの半径が小さくな

(a)

(b)

(c)

上部電極の厚さ: (a) 100 Å, (b) 300 Å, (c) 400 Å
 図 4 下部電極の厚さ一定 (600 Å) のときの
 上部電極の厚さによる破壊こん跡の形態の変化
 Fig. 4. Variation of breakdown damage pat-
 tern with thickness of the top electrode at
 a constant thickness of the base electrode.

り、上部電極の厚さよりも薄くなると上部電極の蒸発によって生じる白い部分はほとんど現われなくなる。このような場合、破壊孔近傍で電極間の絶縁が十分保たなくなり、次の電圧印加時にプロパゲート破壊がしばしば生じる。この場合、しばしば図 2 (b) のようにばらつきの多い E_B - N 特性が得られる。

〈3.3〉 検 討 作成した試料の走査形電子顕微

(a)

(b)

下部電極の厚さ: (a) 400 Å, (b) 300 Å

図 5 上部電極の厚さ一定 (300 Å) のときの
 下部電極の厚さによる破壊こん跡の形態の変化
 Fig. 5. Variation of breakdown damage pat-
 tern with thickness of the base electrode at
 a constant thickness of the top electrode.

鏡写真を図 6 に示す。(a) 図の熱処理前の試料では、白い部分のラメラが無秩序に配向していることがよくわかる。比較のために熱処理後の試料の写真を (b) 図に示す。この写真の中央左の核を中心とし、ラメラが放射状に整然と配列し、二次元球晶を形成している。熱処理前の PE 薄膜の表面は、熱処理後の試料の表面と異なり、ラメラが無秩序に配列し微小な凹凸が多数存在していると考えられる。はじめに、この試料表面の凹凸に起因する上部電極の厚さの不均一性をもとに、斑点状リングの円周方向の生成原因を検討する。

二次元の有限要素法では、平面を三角要素と呼ぶ微小面積に分割し、三角要素の節点の電位 V をポテンシャルエネルギー最小の原理を適用して決定する。三角要素で消費される電力 p は、次式で表わせる⁽⁷⁾。

$$p = \frac{1}{2\rho_s} \iint \left[\left(\frac{\partial V}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial V}{\partial y} \right)^2 \right] dx dy$$

ここで、 ρ_s : 金属膜の面積抵抗

以上の有限要素法の考え方でモデル計算を行なう。

(a) 熱処理前

(b) 熱処理後

図 6 試料表面の走査電子顕微鏡写真

Fig. 6. A scanning electron microphotograph of the surface of PE films.

実際の破壊では、電流は破壊孔を中心として放射状に流れるが、解析を簡単にするため、ここでは始めに電流は平行に流れる場合を考える。また、試料表面の凹凸に起因して生じる上部電極の凹凸はランダムに分布しているが、ここでは一つの凹部または凸部のみに注目する。以上のことから図 7 に示すようなモデルを考え、二次元の有限要素法を用いて各三角要素の p を求める。長方形を形成している一対の三角要素の p を p_1, p_2 とし、その三角要素の面積を s_1, s_2 としたとき、この長方形において単位面積あたりに消費される電力 P は $P = (p_1 + p_2) / (s_1 + s_2)$ と表わされる。 P はその長方形内ですべて発熱に寄与するとして、金属膜の厚さを考慮して単位体積あたりの発熱量 W に換算する。

以上の考え方をもとに、図 7 の中心部の二つの三角要素(要素番号 81, 82)の抵抗値を他の要素の抵抗値の 2 倍(凹部と呼ぶ)および 1/2 倍(凸部と呼ぶ)にしたときの計算結果をそれぞれ図 8 (a), (b) に示す。ここで、各点は各長方形の中心の位置で表示した。ここでは簡単のため、金属膜の体積抵抗率 ρ の厚さ依存性を無視して、中心部の抵抗値を 2 倍にすることは、

図 7 有限要素法による計算における要素分割(平行モデル)

Fig. 7. A matrix for a calculation by the finite element method (parallel model).

(a) 中心部の抵抗値が周囲の 2 倍の場合

(b) 中心部の抵抗値が周囲の 1/2 の場合

図 8 単位体積あたりの発熱量 W の計算結果Fig. 8. Calculated results of heat power W per volume.

電極厚さ d が 1/2 になることに対応すると考える。この場合に対応する図 8 (a) では、電流が凹部の部分を避けて減少し、その要素の発熱量は減少するが、厚さが薄いため単位体積あたりの発熱量である W は周辺部より大きくなる。この電流のうかいは、凹部の近傍の横方向部分において電流を増加させ、その W を増加させる。このようにして、 W は凹部を中心として電流に対して直角方向に帯状に大きくなる。従っ

図 9 有限要素法による計算における要素分割 (放射状モデル)

Fig. 9. A radiate model for a calculation by the finite element method.

て、金属の蒸発に十分な加熱が生ずる領域は、凹部を中心とした電流に対して直角方向に伸びた帯状の領域となる。逆に上部電極に凸部が分布しているとき、その部分の抵抗値が他の部分より小さくなるため、電流は集中して増加し、その要素の発熱量は増加するが、電極が厚いため図 8 (b) に示すように W は小さくなり、電極の蒸発は困難となる。その他の過程も凹部の場合と全く逆となり、凸部の近傍の破壊孔を中心とした円周方向の斑点状リングの部分で電極の蒸発がしにくくなる。

実際の場合、電流は破壊点から放射状に流れる。従って、次に図 9 のようなモデルを考えた。1/4 円を 162 個の三角要素に分割し、中央部の一対の三角要素 (要素番号 79, 80) の抵抗値を他の要素の抵抗値の 2 倍 (凹部と呼ぶ) にしたときの各要素の W を図 7 のモデルと同様な考え方で計算した。 W の凹部の点を含む半径方向の変化を図 10 (a) に示す。また、中心角による W の変化を図 10 (b) に示す。図 10 ではそれぞれの一対の三角要素に対する中心からの半径方向の距離は、その内側の半径と外側の半径との平均で表示した。これらの結果は、前述した長方形のモデルと同様に、凹部を中心とした電流に対して直角方向に伸びた帯状の領域で金属の蒸発が生じることを示している。

以上から円周方向に伸びた斑点状リングの生成原因は、上部電極の厚さの不均一性によって定性的に理解できる。そのうえ、凹部の点における W が増加し、その点の金属が加熱・蒸発すれば、電流はその点を避

(a) 半径方向

(b) 円周方向

図 10 放射状モデルによる単位体積あたりの発熱量 W の計算結果

Fig. 10. Calculated results of heat power W per volume by the radiate model.

けて流れるため、逐次円周方向に W の大きい領域が移動することも、斑点状リングの生成に寄与していると思われる。

次に、斑点状リングの半径方向の分布を考察してみる。図 4 および図 5 に示したように、斑点状リングが分布する半径方向の距離は、上部電極が薄いほど、また下部電極が厚いほど大きくなる。絶縁破壊時に試料に蓄えられたエネルギーは、上部電極抵抗、アーク抵抗および下部電極抵抗の直列回路を流れる電流によって失われる。前報で示したように⁽⁵⁾、このとき上部電極で消費されるエネルギーは、上部電極の抵抗が大きいほど、また下部電極の抵抗が小さいほど大きくなる。このことが斑点状リングの分布半径が上部および下部電極の厚さによって変化することに関係していると思われる。しかし、斑点状リングが半径方向に比較的規則的に分布する理由は明らかでない。前報⁽⁵⁾で述べた上部電極の厚さを下部電極に比較して薄くすることは、自己回復性破壊にとって好ましい条件であるが、

薄膜絶縁体表面の微小な幾何学的凹凸があるときには、付加条件として上部蒸着電極の厚さの均一性を損わないことが必要であることが判明した。

4. む す び

絶縁破壊の研究における薄膜の自己回復性破壊の有用性を述べ、自己回復性破壊試験装置にマイコンを応用し、電圧印加と破壊値の計測の自動化およびデータ処理が可能なシステムを開発した。電気絶縁破壊の試験は、一般に多くの手数を必要とするが、薄膜の自己回復性破壊ではマイコンを導入することにより自動測定が可能になった。

次に、PE 薄膜について自己回復が良好にできる条件について検討した。その結果、前報⁽⁵⁾の上部蒸着電極の厚さを下部蒸着電極よりも薄くすることの必要性は確認されたが、上部電極の厚さの均一性を損うほど薄くしてはならないことが判明した。この均一性が損われた場合、破壊こん跡の形状が斑点リング状となり、次の電圧印加時にプロパゲート破壊が生じやすく、自己回復が良好にできない。この斑点状リングの生成は、電極厚さの不均一性を考慮したモデルについて、有限要素法によって計算した結果をもとに定性的に理解できた。また、斑点状リングが分布する半径が上部および下部電極の厚さに依存して変化したことが、これは試料に蓄えられた電荷が、上・下部電極抵抗を通して放電されるので、上部電極での消費エネルギーの割合が、上・下部電極抵抗の大きさの比に依存する

ためと考えられた。しかし、斑点状リングの半径方向の分布の仕方については、まだ明らかでない。

終りに、本研究を遂行するにあたり協力された岐阜工業高等専門学校の文部技官 亀谷仁一氏ならびに卒業研究の一部として協力された水野明信（現在、東芝メディカルサービス）、佐々木智之（現在、松下電子）の両君に感謝の意を表わすと共に、試料を提供していただいた三菱油化株式会社の関係諸氏に厚くお礼申し上げます。（昭和 57 年 6 月 17 日受付）

文 献

- (1) K. Yoshino, S. Harada, J. Kyokane & Y. Inuishi: "Temperature Dependence of Dielectric Breakdown of Hexatriacontane ($C_{36}H_{74}$) Single Crystal", *Japan J. Appl. Phys.*, **18**, 679 (1979)
- (2) H. Wagner: 1974 Annual Report Conf. on Electrical Insulation & Dielectric Phenomena, p. 62 (1975) National Academy of Science, Washington
- (3) K. Kitagawa, G. Sawa & M. Ieda: "Observation of Dielectric Breakdown Sites in Polyethylenes Thin Film", *Japan J. Appl. Phys.*, **19**, 389 (1980)
- (4) K. Kitagawa, G. Sawa & M. Ieda: "Self-Healing Breakdown at Spherulite Boundaries of Polyethylene Thin Films", *ibid.*, **20**, 87 (1981)
- (5) G. Sawa, K. Arakawa, M. Nagao & M. Ieda: "Conditions for Complete Self-Healing Breakdown in Glow Discharge Polymerized Styrene Films", *Thin Solid Films*, **59**, 131 (1979)
- (6) N. Klein & H. Gafni: "The Maximum Dielectric Strength of Thin Silicon Oxide Films", *IEEE Trans. Electron Devices*, **ED-13**, 231 (1966)
- (7) 加川: 電気・電子のための有限要素法入門, p. 47 (昭 55) オーム社