電子線照射 PMMA の熱刺激電流と熱刺激空間電荷分布

学生員 北嶋 寛規 (武蔵工業大学)

学生員 小高 正嗣 (武蔵工業大学)

正 員 田中 康寛 (武蔵工業大学)

正 員 高田 達雄 (武蔵工業大学)

Thermally Stimulated Current and Thermally Stimulated Space Charge Distribution
in Electron Beam Irradiated PMMAHironori Kitajima, Student-Member Masatsugu Kodaka, Student-Member Yasuhiro Tanaka, Member Tatsuo Takada,
Member
(Musashi Institute of Technology)

Relationship between an external current $J_{\text{ter}}(t)$, a conduction current $J_c(x,t)$ and a displacement current $\varepsilon \partial E(x,t) / \partial t$ of electron-beam irradiated PMMA is discussed using measurement results of a thermally stimulated current(TSC) and a thermally stimulated-space charge distribution(TS-SCD). The displacement current $\varepsilon \partial E(x,t) / \partial t$ is calculated from the result of TS-SCD measurement which was obtained using an improved pulsed electro-acoustic(PEA) system. From the conservation of charge, the conduction current $J_c(x,t)$ is easily calculated using the measured external current $J_{\text{ter}}(t)$ and the calculated displacement current $\varepsilon \partial E(x,t) / \partial t$. In this report, an idea of the conduction current analysis using the theory of conservation of charge is described. Furthermore, an analysis of the conduction current in electron-beam irradiated PMMA is introduced as a typical example.

キーワード：パルス静電応力(PEA)法、熱刺激空間電荷分布(TS-SCD)、熱刺激電流(TSC)、外部回路電流 $J_{\text{ter}}(t)$ 、変位電流 $\varepsilon \partial E(x,t) / \partial t$ 、伝導電流 $J_c(x,t)$

1. はじめに

空間電荷分布を直接測定する技術のない時代は、空間電荷の存在を確認する手法として熱刺激電流(TSC)測定が盛んに用いられた。しかし、TSCは温度上昇により試料内部の電荷分布が変化することにより外部回路を流れる電流を測定する手法であり、その測定結果は試料内部を移動する電荷の量を必ずしも反映していない。例えば、同極性の空間電荷が接地された両方の電極へ等量流れたとき、外部回路に電流は流れない。さらに、本論文で述べるように、外部回路に流れる電流(外部回路電流)は試料内部の空間電荷分布の変化による電界変化に起因する成分(変位電流)と実際に試料中を電荷が移動する成分(伝導電流)との和で表される。従って、空間電荷分布の時間特性が測定できれば、変位電流が計算でき、外部回路の電流測定から変位電流分を差し引くことで、試料中を実際に流れる伝導電流

が求められることが提案されている[1]。

近年、パルス静電応力法[2]などにより、直接空間電荷分布の変化が観測され始めているが、電荷分布の変化と外部回路に流れる電流の関係を解析した例は未だ報告されていない。本論文は、電子線を照射したPMMAの温度を上昇させ熱刺激空間電荷分布(TS-SCD)とTSCの比較を行い、試料中を流れる伝導電流について報告する。

2. 電流連続の式

接地平行平板電極に挟まれた蓄積電荷を有する誘電体(厚さ: d)を考える。図1に示すように x 方向の1次元モデルを考え、誘電体内に $\rho(x,t)$ の空間電荷分布が分布しているとき、その誘電体内の電界分布 $E(x,t)$ との関係はポアソンの式により次式の様に与えられる。

$$\frac{\partial E(x,t)}{\partial x} = \frac{\rho(x,t)}{\varepsilon} \quad (1)$$

ここで、 ε は誘電体の誘電率であり、時間的にまた場所的に変化せず一定である。ある深さ x の位置における伝導電流 $J_c(x, t)$ と蓄積電荷の時間変化量の関係は次の電流連続の式で表される。

$$\frac{\partial J_c(x, t)}{\partial x} + \frac{\partial \rho(x, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left[J_c(x, t) + \varepsilon \frac{\partial E(x, t)}{\partial t} \right] = 0 \quad (2)$$

(2) 式の [] 内は場所的に変化しない電流であることを示している。この電流は外部回路に流れる電流 $J_{ter}(t)$ と等しい量である。本論文で議論する熱刺激電流はこの外部回路電流 $J_{ter}(t)$ となる。従って、(2) 式の [] 内の電流は次のようにまとめることができる。

$$\begin{aligned} J_{ter}(t) &= J_c(x, t) + \varepsilon \frac{\partial E(x, t)}{\partial t} \\ &= J_c(0, t) + \varepsilon \frac{\partial E(0, t)}{\partial t} \\ &= J_c(d, t) + \varepsilon \frac{\partial E(d, t)}{\partial t} \end{aligned} \quad (3)$$

この式の右辺第 1 項は伝導電流 $J_c(x, t)$ であり、第 2 項は変位電流 $\varepsilon \partial E(x, t) / \partial t$ である。また、(3) 式の第 1 行目は位置 x における伝導電流と変位電流の和を示し、第 2 行目は $x=0$ の電極面における、また第 3 行は $x=d$ の電極面における伝導電流と変位電流の和をそれぞれ示している。すなわち、外部回路電流は試料内の任意の位置における伝導電流と変位電流の和となることを示している。さらに、電流が平衡値に達して電界分布が一定になったとき、外部回路電流は伝導電流と等しく $[J_{ter}(t) = J_c(x, t)]$ なる。

図 1 電流解析と測定のモデル図

Fig.1. Schematic diagram for current analysis and measurement.

3. 熱刺激電流と空間電荷分布の同時測定

<3・1> 電子線照射試料 実験に用いた試料は厚さ $500\mu\text{m}$ の市販の PMMA 板であり、透過型電子顕微鏡を用い

てあらかじめ試料内に電子を注入してある。電子線の照射条件は、照射エネルギー 200keV 、照射電流密度 $1\text{nA}/\text{cm}^2$ 、照射時間は 3 時間である。

<3・2> 熱刺激電流と空間電荷分布の同時測定 この試料を室温から 110°C まで昇温速度 $B=1^\circ\text{C}/\text{min}$ で温度上昇させながら、図 2 の測定回路を用いて、TSC と TS-SCD を測定した。試料の温度上昇はバンドヒーターで電極を加熱させて行い、温度は熱電対で測定している。

図 2 測定回路

Fig.2. Measurement circuit for TSC and TS-SCD.

<3・3> 熱刺激電流 TSC の測定結果 TSC は外部回路接続のピコアンメーター (アドバンテスト製: TR8652) で測定し、TS-SCD は改良型 PEA 法装置 [3] で測定している。その典型的な例を図 3 と図 4 に示す。図 3 の TSC スペクトルより 60°C 付近にピークが観測され、これまでの一般的な解釈では、 60°C 付近において電子がトラップから解放される事に起因する電流が流れ外部回路で観測されたことになる。

図 3 電子線照射 PMMA の TSC スペクトル

Fig.3. TSC spectrum of e-beam irradiated PMMA.

<3・4> 熱刺激空間電荷分布 TS-SCD の測定結果 図 4 は図 3 に示した TSC を得る際に同時に測定した TS-SCD の測定結果であり、室温から 110°C まで 10°C おきに示して

る。電子線は図中右側より照射した。同図の測定結果から明らかなように、深さ約 330 μm ($x=170\mu\text{m}$) あたりを中心として負電荷 a が分布しており、また、照射面側 ($x=300\sim 500\mu\text{m}$) にも負電荷 b が一様に分布している。また、電極と試料界面に正電荷 c、d が観測されているが、これらは試料中の蓄積負電荷により電極界面に誘導された電荷である。温度を上昇していくと、試料中の負電荷は徐々に減少していき、110 $^{\circ}\text{C}$ には全て消滅している。

図4 電子線照射 PMMA の熱刺激空間電荷分布

Fig.4. TS-SCD of e-beam irradiated PMMA

図5 空間電荷分布 $\rho(x)$ と電界分布 $E(x)$

Fig.5. Space charge distribution $\rho(x)$ and Electric field $E(x)$.

<3.5> 電界分布の算出 図5は室温における空間電荷分布 $\rho(x)$ の測定結果と $\rho(x)$ より求めた電界分布 $E(x)$ を示している。ここで横軸 x は試料の深さ方向を示している。電界分布 $E(x)$ は、(1)式に示すように、測定した空間電荷分布 $\rho(x)$ を積分して得られる。同図では $x=500\mu\text{m}$ の電極で $E(x=500\mu\text{m})=0$ となるべきであるが、音波の減衰等の補正をしていないので、まだそのような結果になっていない。

4. 試料中の変位電流と伝導電流の算出

(3)式の右辺第2項の変位電流を算出するために、試料中の電界強度の時間特性 $E(x, t)$ をまず求める必要がある。その結果を図6に示す。①の $x=x_1$ の場所は電子線が照射されていない健全絶縁材料の部分である。②の $x=x_2$ の場所は電界強度が $E=0$ の場所で、これより左側の電荷は左側接地電極に向かい、逆に右側の電荷は右側接地電極にそれぞれ向かう。③の $x=x_3$ の場所は電子線が照射され照射誘起電導度 (RIC) の高い劣化した絶縁材料の部分である[4]。

図6の電界減衰の温度特性 $E(x, T(t))$ の時間微分から(3)式の右辺第2項の変位電流を算出できる。その結果を図7、8、9に $\text{TSC} [=S \cdot J_{\text{ter}}(t)]$ と比較して示してある。但し S は電極面積である。図6の電界の温度減衰特性 $E(x, T(t))$ は等速昇温しているの、昇温速度 $B(=1.0^{\circ}\text{C}/\text{min})$ を用いれば変位電流は次式によって算出できる。

$$\frac{\partial E(x, T(t))}{\partial t} = B \frac{\partial E(x, T(t))}{\partial T} \quad (4)$$

次に伝導電流を算出する。(3)式の左辺の外部回路電流は TSC 測定によって得られている。同式の右辺第2項の変位電流は上述の(4)式により算出されている。従って同式の右辺第1項の伝導電流は容易に算出できる。

図6 電界の温度減衰依存性

Fig.6. Temperature dependence of electric field.

5. 外部回路電流、変位電流、伝導電流の検討

図7、8、9に①、②、③の各場所における外部回路電流 $J_{\text{ter}}(t)$ 、変位電流 $\epsilon \partial E(x, t) / \partial t$ 、伝導電流 $J_c(x, t)$ の温度特性を示す。

①の $x=x_1$ の場所における3種の電流を図7に示し検討する。30 $^{\circ}\text{C}$ から 55 $^{\circ}\text{C}$ の温度範囲では伝導電流はほぼ $J_c(x=x_1, t)=0$ であり、外部回路電流と変位電流はほぼ $(J_{\text{ter}}(t) \approx \epsilon \partial E(x, t) / \partial t)$ 等しい。55 $^{\circ}\text{C}$ から 75 $^{\circ}\text{C}$ の温度範囲では伝導電流が急増し、電荷の消滅による電界変化のために変位電流も急増している。その結果として両電流の差

の外部回路電流が TSC として測定される。さらに 75°C から 110°C の温度範囲では依然として伝導電流が流れ、電荷の消滅による電界変化による変位電流は伝導電流の大きさとほぼ等しく方向が逆である。その結果、外部回路電流はほぼ $J_{\text{ter}}(t) \approx 0$ となっている。

図 1 のモデル図に示すように電流の方向は座標 x の正の方向と一致させている。従って、外部回路電流の方向も $x=d$ の電極から接地電極に流れる電流の方向を正としている。例えば、図 6 の $x=x_1$ の場所 (①の位置) では電界は正方向 $E(x=x_1, t) > 0$ で電界強度は時間的に減少 $\varepsilon \partial E(x, t) / \partial t < 0$ しているのでこの場所の変位電流は負になる。

次に②の $x=x_2$ の場所における 3 種の電流を図 8 に示す。この場所はいわゆる零電界面付近であり、伝導電流と変位電流は他の場所のそれらの電流より小さい。零電界面はその場所付近で振動するので、電界の方向も変わり、変位電流は正負に変化している。

次に③の $x=x_3$ の場所における 3 種の電流を図 9 に示し検討する。電子線照射によって試料中にトラップされた電子(負電荷)はこの場所($x=x_3$)を正方向に移動している。従って、伝導電流は負電流になっている。その最大値は 63°C で現れ、110°C で消滅している。この場所での電界は負の方向 $E(x=x_1, t) < 0$ であり、その電界強度は時間的に減少 $\varepsilon \partial E(x, t) / \partial t < 0$ しているので変位電流は正となる。その最大値は 67°C で現れ、110°C で消滅している。その結果、外部回路電流 $TSC [= J_{\text{ter}}(t)]$ は負方向に流れ 55°C 付近にピークが現れ 77°C 付近でいったん零になるが再び小さな負電流が流れている。

ここで、①の $x=x_1$ の場所と③の $x=x_3$ の場所における 3 種の電流を検討する。30°C から 55°C の低温度範囲では伝導電流は③の $x=x_3$ の場所を流れるが、①の $x=x_1$ の場所の場所はまだ流れていない。すなわち、③の $x=x_3$ の場所は電子線照射により照射誘起電導度(RIC)が増大しているので、電子キャリアは移動しやすく伝導電流が大きく流れている。これに対して①の $x=x_1$ の場所は電子線は到達しておらず健全絶縁材料の部分であるので伝導電流は流れていない。55°C より高温範囲になると①の $x=x_1$ の場所の健全絶縁材料の部分は熱的に電導度が上昇するので、電導電流が流れ始める。同様に③の $x=x_3$ の場所の伝導電流も引き続き流れている。そして、トラップされた電子が完全に熱的に開放される温度になると 3 種の電流は零になる。

6. おわりに

熱刺激電流 TSC 測定と熱刺激空間電荷分布 TS-SCD 測定の結果から、外部回路電流 $J_{\text{ter}}(t)$ と試料中の変位電流 $\varepsilon \partial E(x, t) / \partial t$ 、伝導電流 $J_c(x, t)$ の関係を検討し、次の成果を得た。

- (1) 外部回路電流である TSC は試料内部の伝導電流を必ずしも示していないので、今回 TS-SCD を測定することにより、TSC と伝導電流の関係を議論できた。

図 7 ①の $x=x_1$ の場所における各電流の温度特性
Fig.7. Temperature dependence of current at point ①($x=x_1$).

図 8 ②の $x=x_2$ の場所における各電流の温度特性
Fig.8. Temperature dependence of current at point ②($x=x_2$).

図 9 ③の $x=x_3$ の場所における各電流の温度特性
Fig.9. Temperature dependence of current at point ③($x=x_3$).

(2) 今後、試料内の伝導電流を議論するときには外部回路電流と試料内の試料内の空間電荷分布の時間特性を同時に測定する必要がある。

(3) 電子線照射した PMMA の RIC 領域の伝導電流は全温度範囲で流れるのに対し、健全部分の非 RIC 領域の伝導電流は 55℃以上の温度で流れ始める。

最後に、電子線照射において協力して頂きました本学吉田明講師に感謝いたします。なお、本研究の一部は文部省科学研究費補助金(No. 08045043)を得て行われた。

(平成9年1月24日受付、平成9年5月22日再受付)

文 献

- [1] 高田、堺、「電気-音響変換素子を使った電界測定による絶縁フィルム中の伝導と変位電流の分離」、電学論 A, **104**, 510(昭59)
- [2] Y. Li, et al. "Pulsed Electroacoustic Method for Measurement of Charge Accumulation in Solid Dielectrics", IEEE Trans. DEI, **1**, 188(1994)
- [3] 北嶋 他、「パルス静電応力法による高温下の空間電荷分布測定～測定装置の開発～」、電気学会 誘電絶縁材料研究会、DEI-95-91(1995)
- [4] T. Maeno, et al. "Measurements and Simulation of the Spatial Charge Distribution in Electron Beam Irradiated Polymers", JAP, **65**, 1147(1989)

北嶋寛規

(学生員) 1972年9月9日生まれ。1995年3月武蔵工業大学機械工学科卒業。97年4月武蔵工業大学大学院工学研究科生産機械工学専攻修士課程修了。現在、日立電線株式会社、システムマテリアル研究所勤務。工学修士。主として固体絶縁体内部の電荷分布測定法に関する研究に従事。

小高正嗣

(学生員) 1974年11月8日生まれ。1993年4月武蔵工業大学工学部機械工学科入学、97年4月武蔵工業大学大学院工学研究科生産機械工学専攻修士課程入学、現在に至る。主として固体絶縁体内部の電荷分布測定法に関する研究に従事。

田中康寛

(正員) 1961年9月10日生まれ。91年3月早稲田大学大学院理工学研究科博士課程修了。90年4月同大学理工学部助手嘱任。92年4月武蔵工業大学機械工学科専任講師着任。工学博士。有機高分子材料の高電界特性、特に空間電荷分布の研究に従事。90年電気学会論文発表賞受賞。

高田達雄

(正員) 1939年8月8日生まれ。63年3月武蔵工業大学電気工学科卒業。66年東北大学大学院工学研究科電気および通信工学専攻修士課程修了。67年4月武蔵工業大学講師、74年4月同助教授、86年同教授。工学博士。81年9月～83年2月アメリカ MIT 客員研究員。主として高分子絶縁体中の帯電現象と空間電荷測定技術の研究に従事。74年、81年、90年電気学会論文賞受賞。96年電気学会進歩賞受賞。IEEE 会員。