圧電素子誘起圧力波法の改良およびパルス静電応力法との比較

学生員 佐藤 勇樹 (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)

Improvement of Piezo-electrically Induced PWP Method and Its Comparison with PEA Method

Yuki Satoh, Student Member, Yasuhiro Tanaka, Member, Tatsuo Takada, Member
(Musashi Institute of Technology)

The pulsed electroacoustic (PEA) method and the piezo-electrically induced pressure wave propagation (PIPWP) method are compared. While the PEA method has been widely used as a measurement technique to observe space charge distributions in solid dielectric materials, the PIPWP method has not been widely used because of its relatively lower spatial resolution as compared to that of the PEA method. Therefore, in this research, an attempt has been made to improve the resolution of the PIPWP method. In this paper, principles of the generation and the detection of pressure waves in both PEA and PIPWP methods are summarized. Furthermore, the two methods are compared through observations of the generation, drift and trapping of carriers in an organic photoconductor (OPC).

キーワード： 空間電荷、圧電素子誘起圧力波法、パルス静電応力法、有機感光体

1. はじめに

現在、代表的な固体誘電・絶縁材料中の空間電荷分布測定法としては、パルス静電応力(PEA)法^(1,2)、レーザー誘起圧力波(LIPP)法⁽³⁾、圧電素子誘起圧力波法 (Piezo-electrically induced pressure wave propagation, PIPWP 法と略す)⁽⁴⁾ 等が挙げられる。しかし、実際には主に PEA 法と LIPP 法が用いられており、PIPWP 法はあまり用いられていない。その理由として、従来は厚い圧電素子に高電圧方形波パルス印加することにより圧力波パルスを発生させていたが、この方法では十分に幅の狭い圧力波を発生させることが困難であり、満足な位置分解能を得られなかったことが挙げられる。そこで我々は圧力波法における圧力波の発生手法の改良を行うことにより、電荷分布測定における位置分解能や信号出力が、PEA 法によるものとほぼ同等の性能を有する測定装置を開発した。本報告では、PEA 法と PIPWP 法における圧力波の発生や検出等の原理についてまとめ、比較を行った。また、測定例として試料に積層型感光体を用い、それぞれの手法で有機感光体 (Organic Photoconductor, 以下 OPC と略す) 内の電荷挙動観察⁽⁵⁾の結果を示し、比較と検討を行った。

2. PEA 法と改良 PIPWP 法の測定原理の比較

従来の PIPWP 法⁽⁴⁾から改良した点は、パルス圧力波の発生方法である。従来は厚さが数 mm の圧電素子 (ニオブ酸リチウム: LiNbO_3) にパルス幅が 13ns、波高値が数 kV 程度の高電圧パルスを印加し、パルス圧力波を発生させていた⁽⁴⁾が、今回の手法では厚さが $d=9\text{ }\mu\text{m}$ のポリフッ化ビニリデン (PVDF) に波高値 $v_s=600\text{ V}$ のステップ状電圧を印加してパルス圧力波を発生させた。このことを踏まえて、表 1 に PEA 法と PIPWP 法の原理図と圧力波の発生と検出におけるモデルと式を示す。PEA 法は、表 1 の左の欄 (原理図) に示すように、内部に電荷 $\rho(\tau)$ が蓄積した試料にパルス電圧 $e_p(t)$ を印加することで試料中の蓄積電荷に静電応力を発生させ、それによる圧力波 $p(t)$ を圧電素子で検出し電圧信号 $v(t)$ に変換し、試料内の電荷分布を測定する方法である。但し、 $\rho(\tau=x/u_s)$ は位置 x の関数を試料中の音速 u_s で除し、時間の関数に置き換えたものである。また PIPWP 法は、同表の右の欄 (原理図) に示すように内部に電荷 $\rho(\tau)$ が存在する試料にパルス圧力波 $p(t)$ を伝搬させ、この際、外部回路に流れる変位電流 $i(t)$ を測定することにより、試料の厚さ方向の電荷分布を求める方法である。

PEA 法において、表 1 中(1)式で発生する圧力波 $p(t)$ は、印加するパルス電界 $e_p(t)$ の幅 Δt に依存する。但し、(1)式で、 Z_s は試料、 Z_{Al} はアルミニウム電極の音響インピーダンスである。また、表 1 中(2)式より、検出信号 $v(t)$ は圧電素子の圧電定数 $h(\tau)$ の幅 $\Delta\tau$ に依存する。但し、(2)式で、 u_p は圧電素子中の音速、 S は電極面積、 C_p は圧電素子の静電容量、 Z_p は圧電素子の音響インピーダンスである。 $\Delta\tau$ は $p(t)$ が圧電素子を通る時間 d/u_p に等しい。従って、PEA 法の位置分解能は Δt と d に依存していることがわかる。今回行う実験では、 $\Delta t = 5 \text{ ns}$ 、 $d = 9 \text{ }\mu\text{m}$ 、 $u_p = 2260 \text{ m/s}$ である。従って $\Delta\tau$ は約 4 ns となる。方形波と方形波が畳み込まれたとき、出力は台形波となるが、この半値幅は幅の長い方のパルス幅と一致する。このように、出力信号の半値幅は、畳み込まれた 2 つの波のパルス幅のうちの長い方の幅によって決まる。本実験においては $\Delta t > \Delta\tau$ であるの

で、試料中の音速 $u_s = 2000 \text{ m/s}$ とすると、位置分解能は約 $10 \text{ }\mu\text{m}$ ($= \Delta t \times u_s$) となる。

一方、PIPWP 法において、圧電素子にステップ状の電界 $e_p(t)$ を印加することで発生する圧力波 $p(t)$ は表 1 中の(3)式に示す畳み込み積分で表せる。但し、表 1 中(3)式で $g(\tau)$ は圧電素子の電歪定数である。この時発生する圧力波形は圧電素子の厚さ d と印加するステップ電圧波形の立ち上がり時間 Δt_r に依存する。この $p(t)$ が電荷 $\rho(\tau)$ の蓄積した試料中を伝搬することにより、試料を含む閉回路に変位電流が流れ、電流信号 $i(t)$ が得られる。この $i(t)$ は表 1 中(4)式に示す畳み込み積分で表せる。但し、 E_s は試料のヤング率、 l は試料の厚さである。よって位置分解能は d と Δt_r に依存する。今回の実験では $\Delta t_r = 1 \text{ ns}$ 、 $d = 9 \text{ }\mu\text{m}$ 、 $u_p = 2260 \text{ m/s}$ である。従って $\Delta\tau$ は約 4 ns であり、 $\Delta t_r < \Delta\tau$ となり、 $u_s = 2000 \text{ m/s}$ とすると、位置分解能は約 $8 \text{ }\mu\text{m}$ ($= \Delta\tau \times u_s$) となる。

表 1. PEA 法と改良された PIPWP 法の比較

Table.1. Comparison between the PEA method and the improved PIPWP method.

	PEA 法	PIPWP 法
原理図		
圧力波の発生	$p(t) = u_s \frac{Z_{Al}}{Z_s + Z_{Al}} \int_0^t \rho(\tau) e_p(t - \tau) d\tau \quad (1)$	$p(t) = \frac{u_p}{d} \frac{Z_{Al}}{Z_p + Z_{Al}} \int_0^t g(\tau) e_p(t - \tau) d\tau \quad (3)$
圧力波の検出	$v(t) = \frac{u_p S}{C_p d} \frac{2Z_p}{Z_{Al} + Z_p} \int_0^t h(\tau) p(t - \tau) d\tau \quad (2)$	$i(t) = \frac{u_s^2 S}{E_s l} \frac{2Z_s}{Z_{Al} + Z_s} \int_0^t \rho(\tau) p(t - \tau) d\tau \quad (4)$

*印は畳み込み積分を表す。

今回の PIPWP 法の改良によって、圧電素子に印加される電界 $e_p (= v_s/d)$ が従来の数十倍になったことから、数 ns 幅のパルス圧力波が高出力で得られ、位置分解能のみならず、測定感度も飛躍的に向上している。

原理的には両手法は類似しているが、以下の相違点がある。① PEA 法と比較して PIPWP 法は試料に電氣的な刺激を与えることなく測定できる。② PIPWP 法では試料が信号検出回路の一部となっているので、試料に直流高電圧源が接続されている場合には、この電圧源はコンデンサを通して増幅器に接続されていることになり、増幅器を壊しやすい。

3. 測定装置

PEA 法および PIPWP 法の測定装置をそれぞれ図 1、2 に示す。

図 1 の PEA 法の装置では、電極 I とアルミニウム蒸着電極の間に試料を挟み、試料には $\pm 2\text{kV}$ の直流電圧を印加できる。今回の実験では、アルミニウム蒸着電極に 600V 、 5ns のパルス電圧を印加して圧力波を発生させる。発生した圧力波は電極 I を伝搬し、PVDF ($9\mu\text{m}$) に到達する。圧力波は電圧信号に変換され 2 つの増幅器 (Tronteck W500, Hewlett Packard HP8447F) で増幅後、ディジタル化オシロスコープ (LeCroy 9350A) で観測される。

図 1. PEA 法の測定装置

Fig.1. Schematic diagram of the PEA method.

図 2. PIPWP 法の測定装置

Fig.2. Schematic diagram of the PIPWP method.

一方、図 2 に示した PIPWP 法の装置では、電極 I と電極 II の間に半導電層と PVDF ($9\mu\text{m}$) を挟み、PVDF に 600V のステップ状の電圧を印加して圧力波を発生させる。ここで発生した圧力波はアルミニウム電極を経て試料に伝搬する。出力電圧信号は 1000pF の結合コンデンサを介して、増幅器 (Hewlett Packard HP8447F) で増幅後、ディジタル化オシロスコープ (LeCroy 9350A) で観測される。

試料と電圧印加部の電極との音響整合をとるためポリエチレンテレフタレート (PET) フィルムにアルミニウムを蒸着したものを用いている。なお、このアルミニウム蒸着電極は半透明で、試料に光を照射する際に十分に白色光を透過できるものである。

4. 試料および実験結果

<4-1> 試料構成

OPC 試料には積層型感光体を用いた。その構成を図 3 に示す。今回用いた積層型感光体では、電界が印加された状態で光を照射するとキャリア発生層 CGL (Carrier Generation Layer) 中でキャリア対が生成され、ホールのみがキャリア輸送層 CTL (Carrier Transport Layer) 中を電界方向に沿って移動し、正孔捕獲層 HTL (Hole Trap Layer) で捕獲される。なお、今回の実験では、電荷の注入を防ぐために、OPC 試料を 2 枚の PET ($175\mu\text{m}$ および $50\mu\text{m}$) で挟んで実験に供した。HTL の厚さは $1\mu\text{m}$ 以下で、ポリエチレングリコールが用いられている。CTL の厚さは $140\mu\text{m}$ で、バインダのポリカーボネートにはホール輸送材としてスチルベン系ドナーが分子分散されている。CGL の厚さは $0.1\mu\text{m}$ でトリシアゾ顔料を用いたものである。

図 3. OPC 試料構成

Fig.3. Structure of OPC.

図5. PEA 法による OPC 内の電荷挙動観察結果
Fig.5. Behavior of charge in OPC using the PEA method.

図6. PIPWP法によるOPC内の電荷挙動観察結果
Fig.6. Behavior of charge in OPC using the PIPWP method.

<4-2> 測定条件

試料への直流電圧の印加および光照射の条件を図4に示す。試料に印加する電圧は $\pm 2\text{kV}$ で、それぞれの極性で電圧印加中に白色光を照射した。

図4. 測定条件
Fig.4.Measuring

<4-3> 測定結果及び考察

PEA法による積層型感光体内の電荷挙動観察の結果を図5に、PIPWP法による結果を図6に示す。

まず、両図中(a)においては試料の初期状態を示す。電圧印加および光照射していない状態では、試料中に電荷は観測されていない。次に試料に $+2\text{kV}$ の直流電圧を印加した状態を両図中(b)に示す。電極とPETの界面に誘導電荷①②が現われている。電圧を印加したままの状態で行うと、両図中(c)に示すように、CGL中で正負キャリア対が生成され、外部電界方向にホール(正電荷)③のみが移動していることが観察できた。なお、両図中(b)においてもHTLおよびCGL中に、それぞれわずかな正および負電荷④④が観測されているが、これは再結合を免れたキャリア対が存在したため、電圧印加により正電荷が移動し観測されたものと思われる。このあと光を遮断し、電極の両端を短絡した状態を両図中(d)に示す。この時ホール③はHTLにトラップされており、CGL内には負の電荷④が残っている様子が観測されている。次に印加電圧の極性を反転させて -2kV を印加した結果を両図中(e)に示す。印加電圧の反転とともに電極とPETの界面に誘導されている電荷の極性①②も反転していることがわかる。しかし、OPC試料内での電荷③④の移動は見られなかった。さらに光照射を行ったが、特に変化は現れなかった。最後に再び光を遮断し、電極の両端を短絡したが、両図中(d)と同様にホール③はHTL中にトラップされたままであった。

図5、6で明らかなように、これらの結果はどちらの測定方法においても同じように測定できていることがわかる。PIPWP法およびPEA法における位置分解能を、両図中(b)の表面電荷①のピークの半値幅から評価すると、それぞれ $10\mu\text{m}$ および $12\mu\text{m}$ 程度である。PIPWP法およびPEA法における理論的な位置分解能は、前述したように、試料中の音速を 2000m/s とした場合、それぞれ $8\mu\text{m}$ および

$10\mu\text{m}$ 程度であるので、ほぼ理論通りの位置分解能が得られていると考えられる。また、PEA法により得られた出力電圧値はPIPWP法で得られたものの10倍程度になっているが、PEA法では装置の都合上、30dBの増幅器を一つ多く使っており、信号レベル自体はほぼ同等程度であると思われる。

5. まとめ

従来の、厚い圧電素子に幅の狭い高電圧パルスを印加する手法から、薄い圧電素子にステップ状の電圧を印加することにより、PIPWP法を改良した。この改良により、従来の手法に比べて高感度の測定が可能になった。また、この方法を積層型感光体内の電荷挙動観察に適用しPEA法と測定結果を比較した。PEA法では試料に5nsのパルス電圧を印加して、厚さ $9\mu\text{m}$ の圧電素子(PVDF)で検出を行い、PIPWP法では、厚さ $9\mu\text{m}$ の圧電素子(PVDF)に立ち上がり約1nsのステップ状の電圧を印加し測定を行った。測定結果から、どちらの測定方法を用いても $10\sim 12\mu\text{m}$ 程度の位置分解能で空間電荷分布が測定でき、両者ともほぼ同性能の測定装置であることがわかった。

最後に、試料を提供していただきました(株)リコーの酒井捷夫、増田潔両氏に感謝いたします。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8年2月26日受付、平成8年10月7日再受付)

文献

- (1) Y.Li, M.Yasuda and T.Takada, IEEE Trans. DEI., 1,188~195 (1994-2)
- (2) T.Maeno, T.Futami, H.Kushibe, T.Takada and C.M.Cooke, IEEE Trans. Elect. Insul., 23, 433~D.439 (1988-3)
- (3) J.Lewiner, IEEE Trans. Electr. Insul., 22, 351~360, (1986)
- (4) T.Takada, K.Soda and K.Gotoh, J.J.A.P., 29, 1198~1202 (1990)
- (5) A.Tanaka, M.Maeda and T.Tanaka, IEEE Trans. Elect. Insul., 27, 440~444 (1992)
- (6) H.Sumino, Y.Tanaka and T.Takada, Proc.ISE8, 236~241 (1994)

佐藤勇樹

(学生員) 1973年2月3日生まれ。武蔵工業大学大学院生産機械工学専攻修士課程在学中。主として、固体誘電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) (電学論A, 116巻8号, p.689参照)

高田達雄(正員) (電学論A, 116巻8号, p.689参照)