

## 電子線照射されたポリイミドフィルムの電荷蓄積シミュレーション

○森岡祐貴, 渡邊力夫 (東京都市大学)

## Numerical Simulation of Surface Potential History of Dielectric Film under Electric Irradiation.

Yuki Morioka, Rikio Watanabe (Tokyo City University)

Spacecraft are subject to build up charges inside dielectric films covering spacecraft for heat protection and electrical insulation. This will cause electrostatic discharge and may result in failures and anomalies. To avoid this problem, investigation of surface potential of dielectric films under electron irradiation is necessary. In the present study, time histories of surface potential on polyimide films under electron irradiation are investigated by numerical simulation. The charge density inside films is obtained by a Monte-Carlo particle tracking method. Results are verified with experimental data and discussion of the collision models is made. We can use this simulation for analyzing the cause of electric anomalies of spacecraft.

**Key words:** polyimide Film, Internal Charge, Monte-Carlo Simulation, GPGPU, dielectric materials

## 1. 背景と目的

宇宙機表面は熱制御などのために誘電体に覆われていることが多い。誘電体は電荷を通しにくい反面、一旦電荷が蓄積すると電荷散逸に時間がかかる。よって、誘電体が宇宙環境(プラズマ環境・放射線環境)を起因とし帯電してしまうと、その電荷によって誘起される電界/電位により、放電や材料劣化の可能性が高くなる。この現象は宇宙機故障原因の大きな要因であるとされている。Fig.1 に、原因解明できた 299 件の衛星障害データの統計図を示す。これによると、約 54.2%が帯電を原因とする静電放電によって故障している事がわかる<sup>1)</sup>。このように、放電に起因する宇宙機故障は宇宙機損失の主要原因とされていることから、誘電体材料の選定は宇宙設計において重要であり、設計段階から帯電事故防止のための誘電体帯電解析を行う必要がある。誘電体帯電に大きな影響を与えるのは、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。体積抵抗率を計測する手法の一つに、電荷蓄積法という手法が Dennison らにより提案された<sup>2)</sup>。これは、真空チャンバー内で誘電体試料に電子線を照射し、その際表面に誘起される電位減衰履歴から体積抵抗率を算出するものであり、従来法と比べてより実際の使用環境下に近い特性を示すものであると言われている。本学でも電荷蓄積法による体積抵抗率計測が実施されている<sup>3)</sup>が、一回の実験で数週間の期間が必要である一方、体積抵抗率に影響を与えるパラメータは温度/電子線照射エネルギー等、多岐にわたる為、体積抵抗率モデルの確立には数値シミュレーションを利用し、多くのデータを取得する必要がある。特に、試料表面電位履歴に大きく影響を与える試料温度や電子線照射エネルギーに関しては実験と協力してパラメータ依存性を明らかにする必要がある。そこで、計算機上でそれをシミュレートすることにより解析することを目的とした。

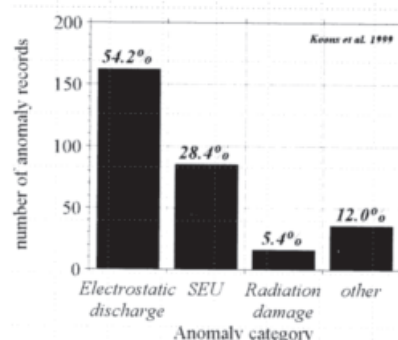


Fig.1 Satellite failure statistics by space environment

## 2. 研究手法と計算モデル

## 2.1 手法概要

本研究では、モンテカルロ法による粒子シミュレーションにより、誘電体内部における照射電子の運動を追跡する。具体的には、電子と誘電体材料を構成する原子との散乱反応を反応断面積によりモデル化し、電子の移動を計算して内部電荷蓄積分布を取得する。考慮される反応は、弾性散乱と非弾性散乱(反応前後で電子のエネルギー減衰をとまらう)とし、非弾性散乱としては、電離とフォノン散乱を考慮した。誘電体内部の電荷蓄積に影響を与えるパラメータとしては、試料温度と電子の入射エネルギーをとった。試料温度が変化すると、誘電体を構成する原子間の格子振動状態が変化するため、温度の影響は格子振動の量子力学的なモデルであるフォノン(音響量子)に取り込むことが出来る。また、電子線照射エネルギー依存性は、初期条件として入射電子がもつエネルギーとして、その影響を調査する。また、一般に荷電粒子の照射を受けた誘電中の部位は RIC(Radiation Induced Conductivity, 放射線誘起導電率)と呼ばれる現象により導電率が上昇(体積抵抗率は減少)するため、試料表

面電位は緩和される方向にあるが、絶縁性能は劣化する。

## 2.2 原子配置

ポリイミドフィルムに電子線を照射した場合、入射電子は、ポリイミドフィルムを構成する原子 (C, H, O, N) との相互作用によって散乱される。相互作用をモデル化するには、ポリイミドフィルムを分子として扱うと電子運動のモデル化が複雑となるため、Fig.3 のように、非結合原子が計算空間においてランダムに分布されていると考え、計算を行った。

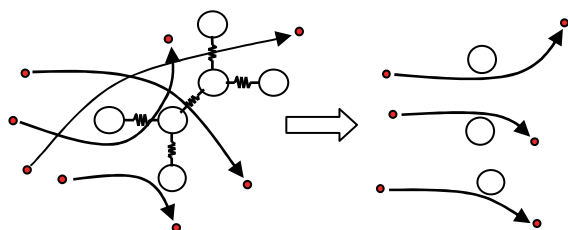


Fig.2 Simulation model

## 2.3 散乱モデル

誘電体内部に侵入した電子は、誘電体を構成する原子と衝突反応を起こす。この衝突反応には、大別して弾性散乱と非弾性散乱がある。弾性散乱とは原子のポテンシャルによって電子の速度ベクトルが変化する反応であり、エネルギー授受はない。一方、非弾性散乱はエネルギー損失を伴った散乱現象全般の事を示す。非弾性散乱の例としては電離が挙げられる。本シミュレーションにおいては、弾性散乱と非弾性散乱(電離・フォノン効果)を考慮して進める事とした。非弾性散乱に関して電離とフォノン効果を適用する理由として、電離は電子-原子衝突反応の非弾性散乱中、もっとも発生する確率が高い衝突反応である為である。二次電子発生過程を計算するに当たっても必要不可欠な散乱反応である為である。フォノン効果に関しては、後節に記す。相互作用の決定には乱数と確率を用いるモンテカルロ法を利用し、確率には、衝突現象を断面積として与えたものである衝突断面積を用いた。弾性散乱に関しては Rutherford 断面積<sup>4)</sup>、電離に関しては, Gryzinski 断面積<sup>5)</sup>、フォノン干渉に関しては、Frohlich 断面積<sup>6)</sup>を用いた。他材質の誘電体に適用する際の拡張性等を考慮しこれらの数式を利用した。衝突断面積と平均自由行程の関係は次式で表される。

$$\lambda^{-1} = \sigma n \quad \dots\dots(1)$$

この式で  $n$  は数密度であり、本研究ではポリイミドの数密度として、 $n = 0.87 \times 10^{28} [\text{m}^{-3}]$  を使用した。プログラムにおいては、エネルギーによって定まる衝突断面積のデータから各エネルギーにおける平均自由行程を求め、電子追跡の際、それを参照するようプログラムに記載した。

## 3.電荷蓄積シミュレーション

### 3.1 計算手法

本計算では、乱数と確率を用いて相互作用を決定する手法であるモンテカルロ法を用いた。これによって、電子の散乱現象を再現した。各反応の発生確率には、衝突断面積を利用し、電子を粒子と見なして、電子の運動を1つ1つ追跡し、電荷の位置を求めた。本計算では非常に膨大な量の計算を必要とするため従来の計算機よりも処理速度の優れた GPGPU を導入し、計算を効率良く行えるようにする予定である。本シミュレーションは、電子の一つ一つを追跡して計算を行うため、計算条件によっては多大な時間を必要とする。そこで、8CPU による並列計算(MPI 並列計算)を行っていたが、今年度より GPGPU を用いることにした。GPGPU(General-purpose computing on graphics processing units)とは、コンピュータの画像処理用として搭載される GPU を計算に利用するというものである。GPU は素粒子計算や流体計算等に利用されている。GPU は並列処理に特化した構成になっているため、プログラムによっては CPU より高速に演算することができる。GPU はマルチコアになっていて、内部に多数の演算ユニット(スレッド)を備えている。各スレッドがそれぞれに処理を実行することで並列処理を実現する。

### 3.2 計算モデル

本研究では、Fig.3 のような試料形状モデルを用いた。電子の運動は3次元で考え、その位置を厚さ方向へ射影した。また、電位・電界の計算は1次元で行った。境界条件は、 $E(0)=0$ 、 $\phi(D)=0$  である。

### 3.3 プログラムの流れ

計算においては、計算ステップごとに入射した各電子と原子の相互作用をモンテカルロ法によって決定し、それに従い各々の電子を移動させた。電子を移動させた後、深さ X 方向の電荷密度分布を求めた。

ポリイミド内の電界と電位は、求めた電荷密度を基に Poisson の式を用いて算出し、電子の運動に反映させた。

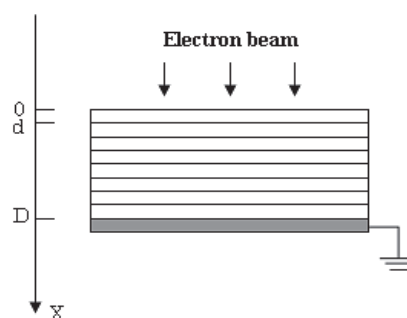


Fig.3 Simulation Model

### 3.4 電界・電位計算及び電子追跡

電界分布  $E(x)$  と電位分布  $\phi(x)$  は、1次元電荷分布  $\rho(x)$  が既知であるならば、1次元の Poisson 方程式により求める事が可能である。

反応と反応の間の電子運動は、古典的な運動方程式で考えた。各電子の追跡は、電子がエネルギーを失うか、電子が境界を越えると終了とした。このときの材料内の電子の最終的な座標と電離後のイオンの位置が記録される。

$$\frac{dE(x)}{dx} = \frac{1}{\epsilon_0 \epsilon} \rho(x) \quad \dots(2)$$

$$\frac{d\phi(x)}{dx} = -E(x) \quad \dots(3)$$

$\epsilon_0$  : 真空中の誘電率,  $\epsilon$  : 比誘電率

### 3.5 RICの影響

実験等により、電子線の照射エネルギーを変化させた場合の体積抵抗率に違いがある事が報告されている。

Table.1 に実験の結果を示す<sup>5)</sup>。Table.1 によるとオーダーレベルでは  $10^{14}[\Omega m]$  と  $10^{16}[\Omega m]$  と一致しているものも、エネルギーを変化させる事で異なる体積抵抗率の値がでてくる。特に、長時間領域の 10[keV] と 30[keV] のものでは、約 44% の差が生じていることがわかる。この事より、エネルギー依存性は無視できない要因であると判断し、エネルギー依存性に影響を与えている要因についての調査を行った。その結果、RIC(Radiation Induced Conductivity, 放射線誘起導電率)と呼ばれる現象の存在がある。これは、電子線照射による材料の一時的変化である。この効果は有機絶縁材料の熱や力学的特性に影響を与えることは少ないが、電気的特性には大きな影響を及ぼす。照射直後など照射で生成した電子やイオンなどの電気伝導キャリアが残存する場合には、電気絶縁性、導電率や誘電特性が変化し、経過時間とともに一定値に収束していく。電子線照射終了後は DRIC(Delayed Radiation Induced Conductivity) としてこの効果が残存する。誘起導電性は材料の照射効果の一時的変化を評価する方法として使用される事が多い。本研究では、(4), (5) の数式を用い、電子線照射領域の導電率とすることでこの現象を表現した。 $k_{ric}$  には 2.83,  $\Delta$  には 0.81 を使用した<sup>7)</sup>。

Table.1 Relation of volume resistivity and energy

照射エネルギー keV	体積抵抗率 $\Omega m$	
	短時間領域(<1h)	長時間領域(>100h)
10	$3.6 \times 10^{14}$	$4.5 \times 10^{16}$
20	$1.4 \times 10^{14}$	$3.4 \times 10^{16}$
30	$3.3 \times 10^{14}$	$3.3 \times 10^{16}$

$$\sigma_{ric} = k_{ric} \dot{D}^\Delta \quad \dots(4)$$

$$\sigma = \sigma_0 + \sigma_{ric} \quad \dots(5)$$

$k_{ric}$ :伝導率比例性定数  $D$ :線量[J/Kg]  
 $\sigma_0$ :誘電体の導電率 $[\Omega^{-1} \cdot m^{-1}]$

### 3.6 温度依存性

Fig.4 で示したように、実験より誘電体帯電には温度依存性が認められる。この依存性は、電荷が誘電体中を移動する際の移動度に表れる。微視的には、誘電体を構成する原子間の格子振動状態が温度により変化するためであるとされている。この現象は“フォノン効果”と呼ばれる。この現象を衝突断面積として数式化したものが下記の式(6)(Frohlich の断面積)である。格子振動を量子化して考え、格子振動をボース粒子(=フォノンと呼ぶ)とみなし、粒子と電子の衝突と置き換えることで、散乱反応の1種とみなす事が可能となる。Fig.5 に計算結果を示した。横軸はエネルギー[eV]、縦軸が散乱断面積 $[m^2]$ である。高温であるほど断面積の値が大きく、フォノン効果が発生しやすい事がわかる。

$$\frac{d\sigma_{ph}}{dp} = \frac{(1+n_p)}{2a_0} \frac{E_{ph}}{E} \left( \frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0} \right) \frac{1}{p} \quad \dots(6)$$

$$n_p = 1 / \exp(E_{ph} / kT - 1) \quad \dots(7)$$

$$P_{min} = \frac{\sqrt{2m}}{h} (\sqrt{E} - \sqrt{E - E_{ph}}) \quad \dots(8)$$

$$P_{max} = \frac{\sqrt{2m}}{h} (\sqrt{E} + \sqrt{E - E_{ph}}) \quad \dots(9)$$

$E_{ph}$  : 縦光学フォノンエネルギー

$p$  : 運動量(縦光学フォノン生成過程で電子によって失われた波動ベクトル)

$h$ :ディラック数  $a_0$ :ボア半径

$T$  : 誘電体の温度[K]

$\epsilon_\infty$  と  $\epsilon_0$  は誘電関数であり、条件によって数値を変える必要がある。 $P$  に関しては  $P_{max} > P > P_{min}$  の範囲で与えられる

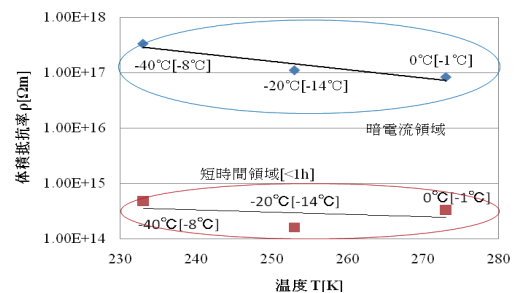


Fig.4 Relation of volume resistivity and temperature



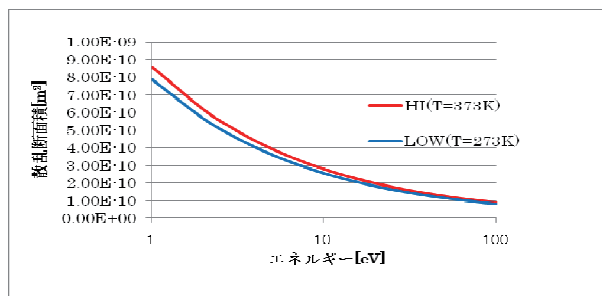


Fig.5 Phonon-Cross section

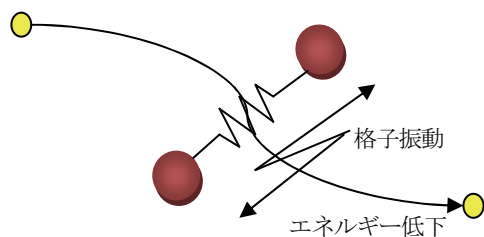


Fig.6 Phonon effect

#### 4.計算結果

計算条件について以下に示す。

1. 試料形状  
厚さ  $50\mu\text{m}$  Y-Z 方向厚さ  $1.5\mu\text{m}$
2. ポリイミド密度:  $1.42\text{g/cm}^3$
3. 照射エネルギー 20keV/10keV
4. 照射電子数 4000 個
5. 時間ステップ  $dt: 1.0 \times 10^{-15}[\text{s}]$

#### 4.1 計算結果および考察

##### 4.1.1 試料温度の影響

Fig.7 に、温度を変化させた場合の電荷密度比較図を示す。縦軸は、電荷密度 $[\text{C}/\text{m}^3]$ を示し、横軸は試料深さ $[\mu\text{m}]$ を示す。照射エネルギーは 10keV であり、温度条件は、高温  $150^\circ\text{C}$  (赤線)、低温 $-150^\circ\text{C}$  (青線)とした。Fig.7 より、高温時は電荷蓄積のピークが  $7\mu\text{m}$  であり、 $24\mu\text{m}$  まで電荷蓄積をし、それ以降では電荷蓄積がされていない。一方で低温時はなだらかな電荷分布が見られる。蓄積電荷総量については、Fig7 を積分した結果、低温時は高温時の約 2.58 倍の電荷を蓄積している。これらの事より、低温誘電体は電荷を蓄積しやすいと言える。また、低温時は高温時に比べて電荷が深部に到達している。Fig.5 からわかるように、高温では衝突断面積の値が大きくなっており、フォノン干渉が発生しやすいため、電子の侵入が低温に比べて阻止されやすくなる。つまり、フォノン干渉による電子のエネルギー減衰が低温時に比べて大きく、最大到達深度が浅くなるからと考えられる。フォノン断面積が効くのは  $100\text{eV}$  以下の低エネルギー領域のみだが、電荷分布はトラップされた電子分布なので、止まる直前の断面積の小さな違いでも大きく影響された

と考える。

##### 4.1.2 照射エネルギーの影響

Fig.8 に、照射エネルギーを変えた場合の電荷密度分布比較図を示す。縦軸は電荷密度 $[\text{C}/\text{m}^3]$ を示し、横軸は試料深さ $[\mu\text{m}]$ を示す。Fig.8 には、照射エネルギーを 10keV (緑線)、20keV (青線)とした場合の結果を示す。Fig.8 より、両者についての大きな違いは、電子の最大到達地点と、ピーク地点における電荷密度の数値に現れている。10keV の場合、 $7\mu\text{m}$  の地点に電荷密度のピークが見られるのに対して、20keV では  $9\mu\text{m}$  地点にピークが見られ、最大到達深度に関しても 10keV では  $24\mu\text{m}$  に対し、20keV では  $33\mu\text{m}$  となっている。到達深度を計算するフェーザの式においても、照射エネルギーが大きくなると到達深度が深くなるという結果が得られるので、エネルギー依存性という点に関して、妥当な結果が得られているといえる。現在の計算では、計算機の容量上、計算粒子数を 4000 個としており、実際的な電荷蓄積量には至っていない。また、確率的な手法であるモンテカルロ法では、粒子数を増やすことにより、その計算精度が向上する。今後は、計算機性能の向上 (GPGPU 利用) を行うことで、計算時間の短縮や計算粒子数を増やす等の改善を図る予定である。

Fig.9 に、式(2)に従って電荷分布を積分して得られた電界分布を示す。縦軸は電界 $[\text{V}/\text{m}]$ を示す。図には 10keV 照射 ( $150^\circ\text{C}$ および $-150^\circ\text{C}$ )と 20keV 照射 ( $150^\circ\text{C}$ )の結果を示す。境界条件は試料表面で電界がゼロ  $E(0)=0[\text{V}/\text{m}]$ としている。電界は、試料表面から電界蓄積の最大値の箇所まで減少し、最小値をとる。その後試料背面に向けては一定の値となっている。20keV と 10keV( $150^\circ\text{C}$ )では、Fig8 で示した電荷蓄積分布のピークの違いが電界分布にも表れている。

Fig.10 に、式(3)に従って電界分布を積分して得られた電位分布を示す。図には、10keV 照射 ( $150^\circ\text{C}$ および $-150^\circ\text{C}$ )と 20keV 照射 ( $150^\circ\text{C}$ )の結果を示す。横軸は試料深さ $[\mu\text{m}]$ 、縦軸は電位 $[\text{V}]$ である。境界条件は、試料背面で電位 0、 $\phi(D)=0$ としている。電位は、試料表面で最大負電位となっており、試料背面へ向けて上昇している。これは、典型的な誘電体内部帯電による電位分布を表しており、本計算手法が妥当であるといえる。20keV 時に表面電位の値が負に大きい値を取っている理由としては、20keV 照射時の方がより多く内部に電荷を蓄積しているからである。一方で温度の違いによる影響が出ている点については、低温時に電荷蓄積総量が 2.58 倍多い為、その影響で低温時の負電位が大きくなっていると考えた。

このように、電子線照射されたポリイミドフィルム内部の電荷蓄積分布をモンテカルロ法に基づいたシミュレーションによって得ることができた。今後は、この分布をもとに電荷連続の式や RIC 効果の取込による電荷移動シミュレーションを引き続き実施し、実時間レベルの試

料表面電位履歴（電位減衰）を取得する。

### 5. 課題点と今後の展望

非弾性散乱のうち、電離モデルに関しては、最外殻電子電離しか考慮しておらず、内殻電離による影響が無視されている。テフロンフィルムによるシミュレーション結果<sup>8)</sup>によると、20keVの電子線照射において全散乱反応中約15%が内殻電離である。ポリイミドフィルムにおける内殻電離の影響度に関しては調査中であるが、テフロンフィルムで全散乱中15%の影響が出ている事を踏まえると、正確なシミュレーションを行う為に内殻電離モデルを導入する必要がある。今後の予定として、温度依存性に関するさらなる調査、内殻電離モデルの導入、電位減衰シミュレーションの実施を行う。これらが完了したのち、計算高速化を行う為にGPGPUを用いて計算出来るようにする予定である。

電位減衰シミュレーションにおいては、式(10)の電荷連続の式を用いて表面電位の時間履歴を計算する。RICの影響は、このうち電流密度を求める際の式(11)内の $\sigma$ に考慮される。

$$\frac{dN(r, z, t)}{dt} = G(r, z, t) - \frac{1}{q} \text{div}J(r, z, t) \quad (10)$$

$$J(r, z, t) = \sigma(r, z, t) * E(r, z, t) \quad (11)$$

N: 試料内電荷分布[m<sup>3</sup>]

G: 単位体積当たりの電荷蓄積量[m<sup>3</sup>]

q: 電荷[C] J: 電流密度[A/m<sup>2</sup>]

E: 電界[V/m]  $\sigma$ : 導電率[1/( $\Omega \cdot \text{cm}$ )]

表面電位の減衰から、体積抵抗率を計算し本研究室で行っている電荷蓄積法による計測実験の結果と比較し、検討を行う事が可能となる。

### 参考文献

- [1]五家建夫:”宇宙環境リスク事典”:丸善,2006,p131.
- [2]A.R.Frederickson and J.R.Dennison:”IEEE TRANSACTION ONNUCLEAR SCIENCE,VOL.50,NO6,”:pp2284~2291,2003.
- [3]植本 一樹:”誘電体を用いた誘電体の体積低効率測定について”武蔵工業大学修士論文, 2009
- [4]N.Bouarissa,B.Deghfel,and A.Bentabet:”Electron slowing down in solid targets:Monte-Carlo caluculations”:2001
- [5]Gryzinski.M.:”Phys.Rev,19,A336”:1965
- [6]Llancer.J. and Garwin E.L.:”J.appl.phys.,40,2766”:1969
- [7]G.M.Yang and G.M.Sessler:”IEEE Trans.Electr.Insul.27,834”:1992
- [8]大田真広:”テフロンフィルム内に蓄積する電荷のモンテカルロシミュレーション”武蔵工業大学修士論文,2005

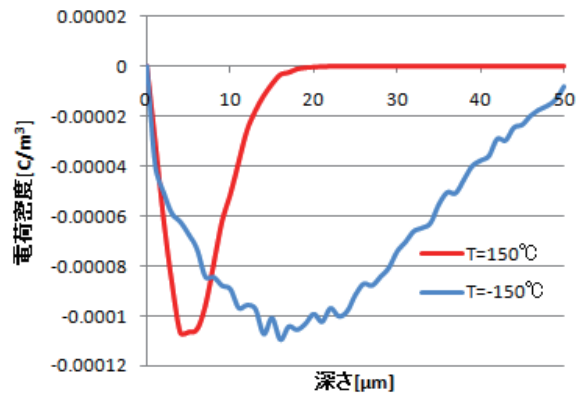


Fig.7 Temperature dependence of charge density distribution

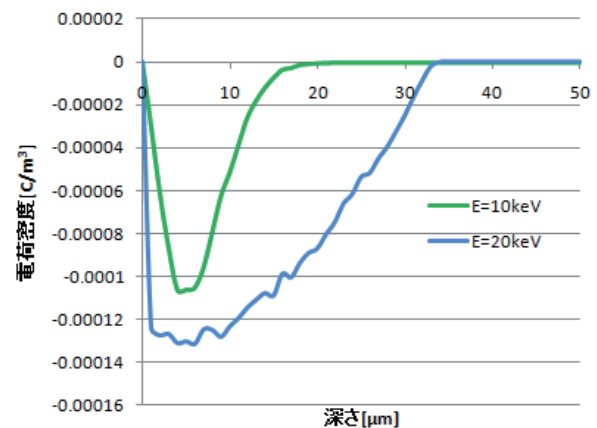


Fig.8 Energy dependence of charge density distribution

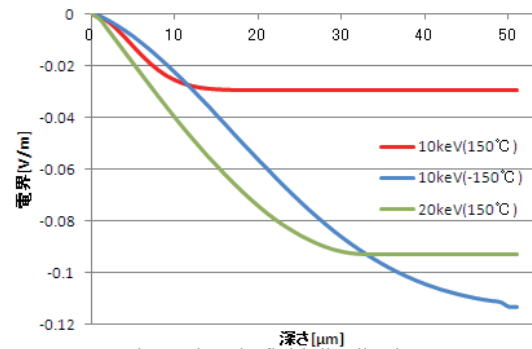


Fig.9 Electric field distribution

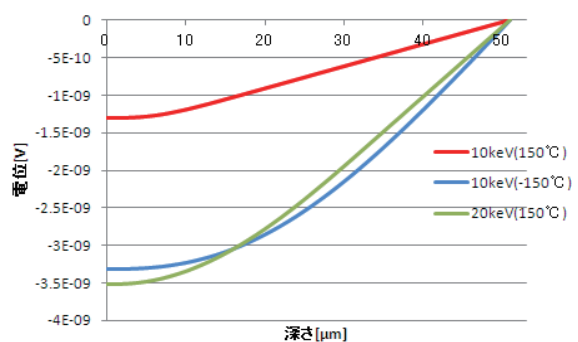


Fig.10 Potential distribution