

論 文

薄膜トンネルエミッタを用いた絶縁液体中の 異常過渡電流に関するシミュレーション

中村 岩美^{*,1}, 石井 新之助^{**}, 山田 弘^{***}

(1998年11月25日受付, 1999年9月17日受理)

A Simulation on Anomalous Transient Current in Dielectric Liquid for Charge Injection by Thin-film Tunnel Emitter

Iwami NAKAMURA,^{*,1} Shinnosuke ISHII^{**} and Hiroshi YAMADA^{***}

(Received November 25, 1998; Accepted September 17, 1999)

Conduction phenomena of charge carriers injected into insulating liquids from thin-film tunnel emitter have been studied on the basis of a charge injection model. In this model, pulsed charges are injected into a plane-to-plane gap when a voltage is applied to the gap. It is shown that the current waveform obtained from this simulation is controlled by conduction current limited by the amounts of injected charges, although the waveform in low current densities has been explained by space charge freed current (SCFC) and in high current densities by space charge limited current (SCLC). A time at which a maximum value in the current waveform appears agrees with an experimental value only in the case that the injected charges from the emitter is assumed to have an initial velocity.

1. はじめに

電力需要の増大と共に、電源の大規模化および超高压送電化が進み、これらに耐える高性能な絶縁材料の開発が強く求められている。その中で、絶縁液体は、発電所および変電所の大型変圧器の絶縁材料として現在も重要な位置を占めており、絶縁破壊についての研究は古くから行われてきた。さらに、この数十年は、絶縁液体の電気伝導現象に関する研究が盛んに行われ、多くの研究結果が報告されている。特に、電気伝導現象に対する種々の数値解析法が開発され、物性工学的理論面からの解析が行われるようになってきた。しかし、絶縁液体は複雑な分子構造を持ち、種々の不純物を取り込みやすいこと、加えて、実験方法の違

いなどから、実験結果が研究者によりまちまちであり、解明しなければならない問題を多く残している。

ところで、絶縁液体における電気伝導現象は種々の電荷注入法を用いて実験的に研究してきた。これらを大別すると、紫外線照射法¹⁾、レーザ光線照射法²⁾、X線照射法³⁾、電界放出による方法⁴⁾、薄膜トンネル素子を用いる方法⁵⁾などである。その結果、これらの現象は空間電荷に制限されない伝導 (SCFC) と空間電荷制限伝導 (SCLC) に分けて理解されてきた。薄膜トンネル素子は Mead 氏により提案され⁶⁾、Silver 氏らは初めて液体誘電体中の電気伝導の研究に応用した。彼らの作製した素子は Al/Al₂O₃/Au であったが、絶縁被膜にピンホールが生じることもあり、実験に再現性が乏しいなどの問題点もあった。その後、土田氏らは絶縁被膜を Al₂O₃ と SiO の複合絶縁被膜とし、Al/Al₂O₃·SiO/Au を作製した⁷⁾。これを用いることにより再現性のある実験結果が得られるようになった。筆者らはこの薄膜トンネル素子を用いて、パルス状の電荷を注入した場合の電流波形を測定し、SCFC と SCLC では説明できない実験結果が得られたことを報告している⁸⁾。この異常現象の原因として液体流動、液体加熱などを考察したが、なお不明な点を多く残している。一方、数値解析法では、Many 氏らの連続的電荷注入における絶縁液体中の過渡電流波形の数値解析法⁹⁾を初めとして、幾つかの方法が開発されてきた^{10,11)}。以前に、筆者らは Many 氏のものと

キーワード：薄膜トンネル素子、絶縁液体、電気伝導、電荷注入、空間電荷制限伝導

* 北海道教育大学岩見沢校 (068-8642 岩見沢市緑が丘2丁目)

Iwamizawa Campus, Hokkaido University of Education, Iwamizawa 068-8642, Japan

** 一ノ関高専電気工学科 (021-8511 一ノ関市萩荘字高梨)

Ichinoseki National College of Technology, Ichinoseki 021-8511, Japan

*** 岩手大学工学部電気電子工学科 (020-8551 盛岡市上田4丁目)

Iwate University, Faculty of Engineering, Electrical and Electronic Engineering, Iwate 020-8551, Japan

¹ iwami@iwa.hokkyodai.ac.jp

は異なる数値解析モデルを考え、方形波パルス列電圧印加時の過渡電流波形に関する数値解析を行い、その結果を報告した¹²⁾。これらの数値解析法はSCLCとして計算されてきた。一方、Atten氏らはSCLCとは異なる、「注入電荷量は一定である」という境界条件を用いて絶縁液体中の電気伝導現象を数値解析した¹³⁾。この現象を注入電荷量に制限される伝導（ICLC）と呼ぶことにする。薄膜トンネル素子では注入する電荷量を変えることができるところから同数値解析モデルと一致する。また、パルス状の電荷を注入する場合、電気伝導現象はSCLCの条件を満たすことはあり得ないことからICLCと理解することが妥当である。しかし、これまでパルス状の電荷注入における数値解析結果の報告はまだ見当らない。以上の観点からこの研究では、薄膜トンネル素子の電荷注入機構には他の注入法と基本的な違いがあり、その要因がICLC特性に影響を及ぼすものと考え、絶縁液体に注入されるパルス状の電荷には初速度があることを仮定し、ICLC特性のシミュレーションを行った。

2. 薄膜トンネルエミッタの作製と電荷放出機構

薄膜トンネル素子は、M1（金属）-I（絶縁物）-M2（金属）構造を持つ素子で、一方の電極金属M2を極めて薄くし、その電極に正の電圧を印加すれば、その金属膜を通して電子を放出することができる。この電荷注入素子をトンネル素子とするためには、I（絶縁物）も極めて薄く作製することが必要である。実験に用いた薄膜トンネル素子には対向電極を付けて三端子構造としたので、以後薄膜トンネルエミッタという。薄膜トンネルエミッタ（Al/Al₂O₃・SiO/Au）素子の断面構造を図1に示す。この素子の作製では、顕微鏡用のスライドガラス上にAlエミッタ電極を蒸着し、その後、約230°Cの高温槽の中で約1時間置き、Alを酸化させた。その上にSiOを低蒸着速度（5Å/s以下）で蒸着し50~100ÅのSiO膜を形成した。さらに、エッジ部の電界集中による放出電流の増加を抑える目的で、エッ

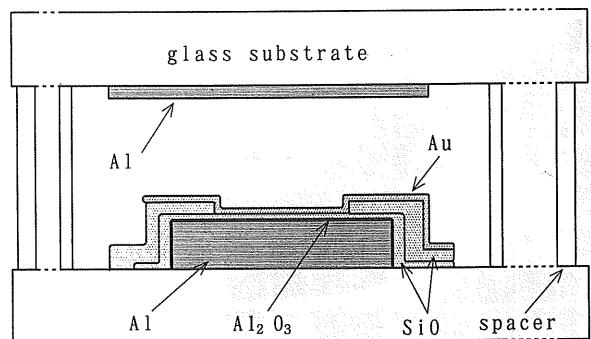


図1 薄膜トンネルエミッタの構造

Fig. 1 Structure of thin-film tunnel emitter.

ジ部に厚くSiOを蒸着している。最後に、50~200Åの厚みを持つAuベース電極を蒸着して、薄膜トンネルエミッタを作製した。電子放出面の面積は2×2 mm²である。

このように、この薄膜トンネルエミッタの特徴は、以前から使用してきた絶縁膜Al₂O₃の上にSiOを真空蒸着することにより、素子にSiO膜を加えて複合絶縁膜Al₂O₃・SiOとし、素子の絶縁破壊強度を高くしたところにある。この際、SiO蒸着膜の誘電率、屈折率および絶縁破壊強度等が蒸着速度により変化する性質¹⁴⁾を生かして、SiOを低蒸着速度で真空蒸着することにより複合絶縁膜Al₂O₃・SiOを形成している。このため、従来の絶縁膜では数V程度の電圧を印加すると絶縁破壊していたが、この複合絶縁膜では、印加電圧を数十Vに高めることが可能となり、多量の電荷注入が容易である。

薄膜トンネルエミッタにおける電子エネルギー準位モデルを図2に示す。エミッタ電極に負パルス電圧を加えるとエミッタのフェルミ準位付近にある電子は薄膜の禁止帯をトンネル効果で通過する。このとき、電子は図2に示す絶縁薄膜の大部分を占めるトンネル領域でエネルギーを失うことはない。その上にあるベース電極中でエネルギーを失うことがないとすれば、エミッタ電極のフェルミ準位付近のエネルギーを維持したままベース電極に達する¹⁵⁾。ベース電極の伝導帶中においてこの電子が持つエネルギーを qV_{eb} で表し、ベース電極から絶縁液体へ電子を放出する際のベース電極表面の仕事関数をWと表すと、 $qV_{eb} > W$ の場合にはベースコレクタ間に印加された電界により、電子はベース電極から絶縁液体中へ放出される。特に、

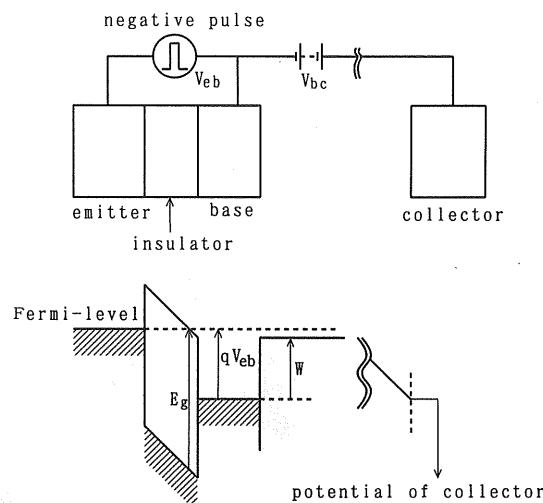


図2 トンネルエミッタから電子放出するためのエネルギー準位モデル

Fig. 2 Energy band model for electron emission from tunnel emitter.

$qV_{eb} \gg W$ の場合にはトンネル電子はある初速度を持ってベース電極から絶縁液体中へ放出されることが考えられる。一方、電子の運動方向について考えると、薄膜トンネルエミッタにおいては、エミッタ-ベース間を走行する方向とベース-コレクタ間を走行する方向は一致している。エミッタ-ベース間に加えられた高電界により加速された電子は極めて薄いベース電極を通過してコレクタ電極へ進む。このとき、加速された電子が持つ運動エネルギーが大きい場合、ベース-コレクタ間に放出される電子は初速度を持つことが考えられる。この電荷注入機構は他の電荷注入法には見られない薄膜トンネルエミッタだけが持つ特有な電荷注入機構である。

3. 実験方法および結果

シリコーン油中への電荷注入時の過渡電流測定は、図3に示すように薄膜トンネルエミッタのベース電極を接地し、エミッタ電極に負パルス電圧 V_{eb} を、コレクタ電極に正の電荷駆動電圧 V_{bc} を印加して行った。なお、ベ-

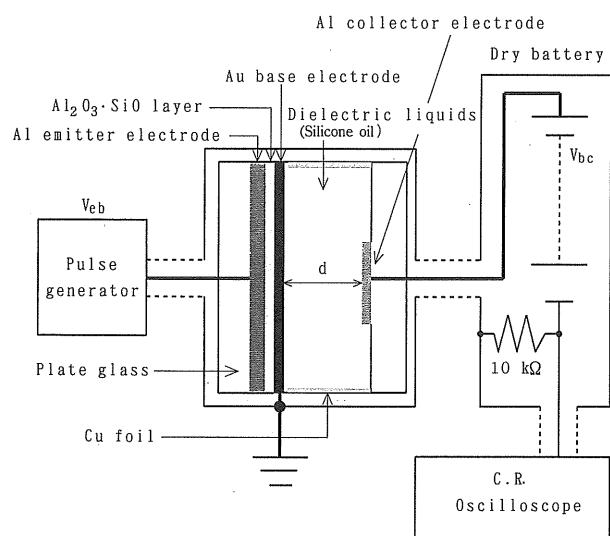


図3 電流測定回路

Fig. 3 Current measurement circuit.

スコレクタ間距離は $50 \mu\text{m}$ とした。パルス電圧印加には、ヒューレット・パッカード製パルス発生器（タイプ214B）を使用した。過渡電流測定にはソニー・テクトロニクス製オシロスコープ7904、または7633（7A22 プラグイン）を用いた。電荷駆動電圧 V_{bc} の電源には90 Vの積層乾電池を直列にして用いた。測定電流は微小なので、測定系のシールドには特に留意している。試料には東芝製50 cStシリコーン油（TSF-451）をポアサイズ $1 \mu\text{m}$ のフィルタで真空ろ過して使用した。

電荷駆動電圧 V_{bc} を 673 V 一定、電荷注入用パルス電圧の幅を $30 \mu\text{s}$ とし、パルス電圧 V_{eb} を -8.0 V から -20.8 V まで変えた場合の過渡電流波形を図4に示す。このように過渡電流波形にピークが現われることから、伝導現象はSCLCであることが推測できる。しかし、よく調べると同波形には、電荷走行時間とピーク電流値の二点についてSCLCでは説明できない特異な現象が現われていることがわかる。すなわち、注入電荷がコレクタに到達したときにピークが現われるが、このピーク発生時間 T_m を空間電荷に制限されない伝導（SCFC）の走行時間 T_0 で規格化してみると、 $T_m/T_0=0.5 \sim 0.6$ となり、SCLCにおける0.786と大きな違いがある。次に、ピーク電流値 I_m を初期電流値 I_0 で規格化してみると、 $I_m/I_0=3.5 \sim 5.5$ となり、これもSCLCにおける2.72とかなり異なった値となる。また、SCFCならば、注入された電荷の移動速度は一定であるため、過渡電流波形は台形状となり、ピークが現われないはずであり、得られた波形とは著しく異なる。以上のことから、薄膜トンネルエミッタによる電荷注入法には、他の電荷注入法では存在しない特有な電荷注入機構が伴うものと推測される。

さらに、同実験結果には極めて興味深いことが現れている。 V_{eb} を -8.0 V から -11.1 V までえたときには、 T_m が小さくなっているにも係わらず、 V_{eb} を -11.1 V から -20.8 V までえたときには、 T_m が大きくなっている。このことについては5.5節において考察する。

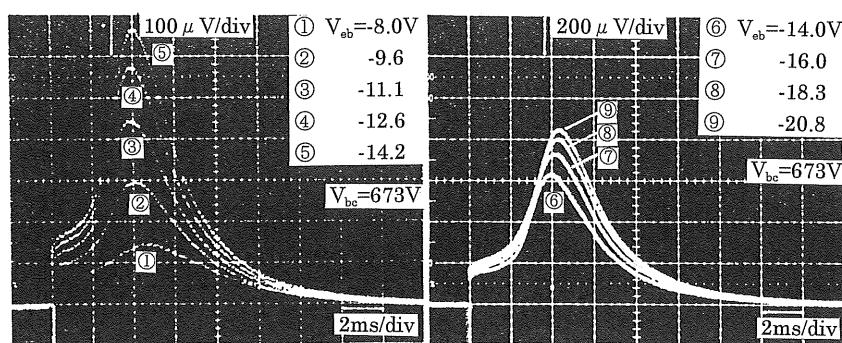


図4 パルス電圧を変化したときの過渡電流波形

Fig. 4 Typical current traces measured for various injection voltages.

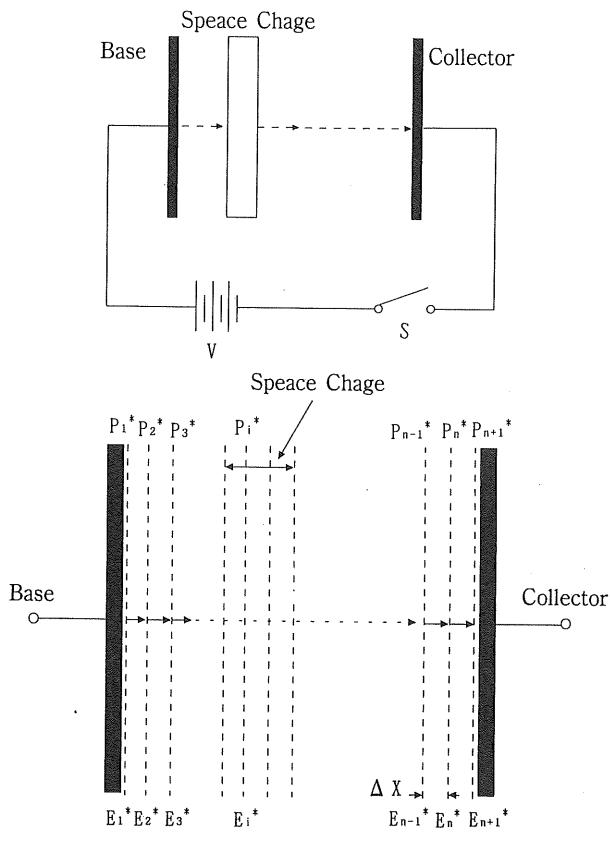


図 5 計算モデル

Fig. 5 Charge transfer aspect for calculation.

4. シミュレーション式の導出

4.1 計算モデルと基本式

計算モデルは、直流電圧が印加された平行平板電極間に陽極側からパルス状のプラス電荷が注入されたものとする。概略的な計算モデルと電極間の分割図を図 5 に示す。これは陰極から電子が注入された場合と等価である。また、絶縁液体の移動度 μ に対する拡散係数 D の大きさから、ドリフト電流に比し、拡散電流は無視し得る程度に小さいと考えられることから、これを無視する。ただし、薄膜トンネルエミッタ特有の電子注入機構については 5.5 節で述べる。一般的にイオン伝導を数値解析する場合、初期条件として何らかの電荷密度を設定し、ポアソンの式を満たすように電界を決め、電流連続の式を用いて電流密度を計算する。これらの式は

$$J = \epsilon \frac{\partial E}{\partial t} + \mu P E \quad (1)$$

$$\frac{\partial E}{\partial X} = \frac{P}{\epsilon} \quad (2)$$

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -\frac{\partial (\mu P E)}{\partial X} \quad (3)$$

で表される。ここで J は電流密度、 P は正イオン電荷密度、 E は電界、 X は電極間距離、 t は時間、 ϵ は絶縁液体の誘電率、 μ はイオン移動度である。初期条件を

$$E(X, 0) = E_0, P(X, 0) = 0 \quad (4)$$

とし、境界条件は

$$V(0, t) = V_0, V(d, t) = 0, P(0, t) = P_0 \quad (5)$$

で表される。ここで V_0 は印加電圧、 E_0 は印加電界、 P_0 は注入電荷密度、 d は電極間距離である。ただし、 $t > 0$ であり、ゼロではない。一般的に多くの数値解析法で行われているように、諸量を規格化するために、それぞれの変数を

$$P^* = \frac{P}{\epsilon V / d}, t^* = \frac{t}{d / \mu V}, E^* = \frac{E}{V / d}, X^* = \frac{X}{d}, J^* = \frac{J}{\epsilon \mu V^2 / d^3}, P_0^* = \frac{P_0}{\epsilon V / d^2} \quad (6)$$

と置き換え、上式 (1~3) を書き直すと

$$J^* = \frac{\partial E^*}{\partial t^*} + P^* E^* \quad (7)$$

$$\frac{\partial E^*}{\partial X^*} = P^* \quad (8)$$

$$\frac{\partial P^*}{\partial t^*} = -\frac{\partial (P^* E^*)}{\partial X^*} \quad (9)$$

となり、初期条件は

$$E^*(X^*, 0) = 1, P^*(X^*, 0) = 0 \quad (10)$$

境界条件は

$$V^*(0, t^*) = 1, V^*(1, t^*) = 0, P^*(0, t^*) = P_0^* \quad (11)$$

となる。ただし、 $t^* > 0$ であり、ゼロではない。また、注入電荷はパルス状なのでパルスオフ時の境界条件は $P^*(0, t^*) = 0$ となる。ここで導入した P_0^* は初期注入電荷密度を表現する無次元量であり、本シミュレーションでは重要な要素である。他の数値解析法^{9~11)}における境界条件は、注入電極近傍の電界はゼロ、すなわち、注入電極面から注入される電荷の電荷密度は無限大としているが、本数値解析法における境界条件は、注入する電荷密度は一定値としている。薄膜トンネルエミッタを用いると V_{eb} を変化することにより注入する電荷量を変えることが可能であり、本数値解析法は実験条件に適合している。なお、 P_0^* の値を 10 以上とすれば、他の数値解析法の計算結果とほぼ同じ計算結果が得られる。これらの式からシミュレーションに用いる式を導き出す。

もし、ある時間 t^* における $P^*(X_i^*, t^*)$, $E^*(X_i^*, t^*)$ の分布がわかっており、 $t^* + \Delta t^*$ 後の $P^*(X_i^*, t^* + \Delta t^*)$, $E^*(X_i^*, t^* + \Delta t^*)$ の値を求める式を上式より導き出すことができれば過渡値は求められる。ここで添字の i は電極間を n 等分したベースから i 番目の位置を示す。

4.2 $P^*(X_i^*, t^* + \Delta t^*)$ の求め方

P^* は場所と時間の関数であり、微分方程式を数値計算するための内挿法の式に P^* を当てはめると、 P^* に関しては以下の 2 式が成り立つ。

$$\frac{\partial P^*}{\partial t^*} = \frac{P^*(X_1^*, t^* + \Delta t^*) - P^*(X_i^*, t^*)}{\Delta t^*} \quad (12)$$

$$\frac{\partial P^*}{\partial X^*} = \frac{P^*(X_1^*, t^* + \Delta t^*) - P^*(X_{i-1}^*, t^*)}{\Delta X^*} \quad (13)$$

上記の式 (12), (13) を式 (9) に代入すると $P^*(X_i^*, t^* + \Delta t^*)$ は以下のように求まる。

$$\begin{aligned} P^*(X_i^*, t^* + \Delta t^*) &= P^*(X_i^*, t^*) \\ &- \Delta X^* P^*(X_i^*, t^*)^2 / E_{\max}^* \\ &- E^*(X_i^*, t^*) \{ P^*(X_i^*, t^*) \\ &- P^*(X_{i-1}^*, t^*) \} / E_{\max}^* \end{aligned} \quad (14)$$

ここで ΔX^* は電極間距離を n 等分した値 $1/n$ とする。また、 Δt^* を決める場合、この時間内に電荷の移動する距離が ΔX^* を超えないようにしなければならない。ここでは数値計算の安定性のために $\Delta t^* = \Delta X^* / E_{\max}^*$ とした。 E_{\max}^* は電極間の最大電界値である。

4.3 $E^*(X_i^*, t^* + \Delta t^*)$ の求め方

式 (8) を積分すると

$$E^*(X^*) = E^*(0) + \int_0^{X^*} P^* dx^* \quad (15)$$

となる。ここで $E^*(0)$ は $X^* = 0$ における電界である。これを定積分した式

$$\int_0^t E^*(X^*) dl^* = E^*(0) + \int_0^t \int_0^{X^*} P^* dx^* dl^* \quad (16)$$

において、積分の順序変換を行い、 $\int_0^t E^*(X^*) dl^* = 1$ を代入すると

$$E^*(0) = 1 - \int_0^t (1 - l^*) P^* dl^* \quad (17)$$

が得られる。前節の $t^* + \Delta t^*$ における $P^*(X_i^*, t^* + \Delta t^*)$ が求められていれば $E^*(X_i^*, t^* + \Delta t^*)$ が求められる。

4.4 J^* の求め方

式 (7) より J^* は簡単に

$$J^* = \int_0^t P^* E^* dx^* \quad (18)$$

として求められる。

5. 計算結果および考察

5.1 $T^* = 1.5$ とした電流密度波形

連続的電荷注入の場合とほぼ同様とみなしうるよう、注入するパルス状電荷の時間幅 T^* を 1.5 とした場合の電流密度波形の計算結果を図 6 に示す。なお、計算に用いた電極間の分割数 n は 80 とした。ここで、 T^* は t^* と同様に規格化した値であり、 $T^* = 1$ は注入された電荷群の波頭部が対向電極に到達するまでの時間を意味する。パルス状電荷注入ではあるが、 T^* は 1 を超えているので、過渡電流密度波形は連続的電荷注入時の波形に相当する。 $P_0^* < 1$ における波形はピーク電流密度発生時間 $t_m^* = 1$ 付近までゼロからほぼ直線的に増加し、その後 $t^* = 1.5$ まで一定となり、パルス状電荷注入が終了する $t^* = 1.5$ 以後にはまた直線的に減少している。これらの波形だけ見ると、電流密度波形にはっきりと見分けるようなピークは現われず、同波形は SCFC のように見える。しかし、 P_0^* が大きくなれば t_m^* は左側にシフトしていることから同波形は ICLC であることがわかる。 $P_0^* > 1.5$ における波形には顕著なピークが現われ、 P_0^* を大きくすると t_m^* は更に左側へシフトし、 $P_0^* = 10$ における波形では $t_m^* = 0.79$ となる。また、同波形では、SCLC の初期電流密度（図中の点線）で規格化した J_m^*/J_0^* は 2.72 となり、SCLC 現象の値と一致する。これらの結果から、ICLC における J_m^*/J_0^* および J_m^* の値は固定した一つの値として定まるものではなく、注入する電荷量により変化する。ICLC における J_m^*/J_0^* は 1~2.72 まで変化し、その最大値は多量の電荷注入が可能という条件においてのみ SCLC の値と一致する。同様に ICLC における t_m^* は 0.79~1 まで変化し、その最小値は SCLC の値と一致する。これらの値は、土田氏らが薄膜トンネルエミッタを用いて測定した電流波形の実験結果⁷⁾ともほぼ一致している。したがって、薄膜トンネルエミッタを用いた電荷注入における過渡電気伝導現象を解析するために、本数値解析法に用いた境界条件 P^*

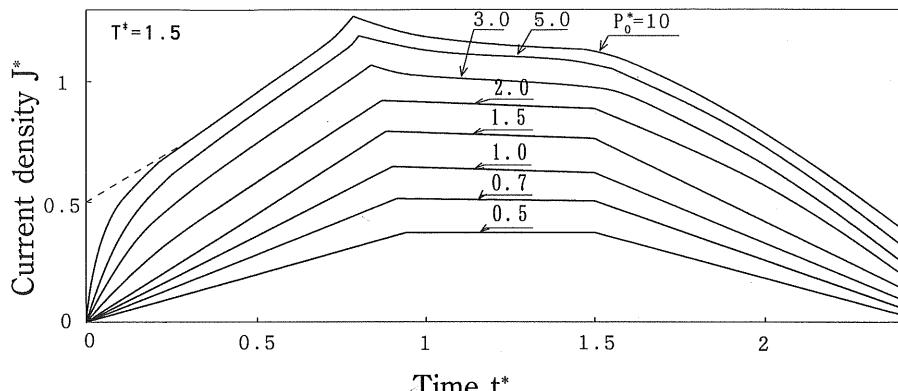


図 6 計算された過渡電流密度波形

Fig. 6 Time dependence of calculated current density.

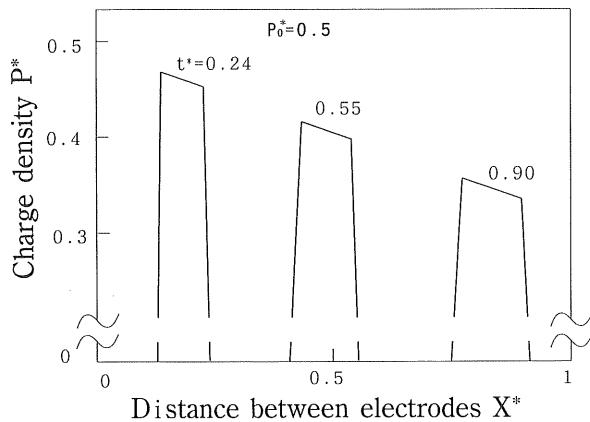


図 7 注入電荷量が少ない場合のイオン空間電荷密度分布の経時変化

Fig. 7 Calculated charge density characteristics vs normalized distance from emitter for low charge injection.

$(0, t^*) = P_0^*$ は妥当なものであると考えられる。

5.2 電荷密度の経時変化

注入するパルス状電荷の時間幅 T^* を 0.1 とし、初期電荷密度 P_0^* が小さい場合の例として、 $P_0^*=0.5$ における電荷密度分布の経時変化を図 7 に示す。パルス状の電荷注入を行えば、注入直後の各電荷間の相対的位置は変わらず、電荷密度の大きさも変化せず、図における電荷群は、時間と共に右方向に平行移動することが予想された。なぜなら、パルス状電荷注入は連続的電荷注入と比較するとチャージシート状電荷つまり面電荷であると予想していたからである。また、印加電界が低い場合および注入電荷密度が小さい場合の電気伝導現象は SCFC であると考えられてきたためである。しかし、この解析結果によると、電荷群の波頭部分に位置する電荷密度の値は波尾部分の値より小さくなっている。また、電荷群の初期値は 0.5 であったにもかかわらず、コレクタへ到達するときには 0.34 と、時間の経過と共に小さくなっている。注入された電荷量は時間の経過と共に減少することはないので、電荷密度の値が減少した分だけパルス状電荷群の幅は広くなることがわかった。このことは、電荷群の波頭部分の電荷は加速電界により移動速度が大きくなり、波尾部分の電荷は減速電界により移動速度が小さくなっていることを示している。したがって、完全な SCFC はあり得ず、注入する電荷の量や形状に関わらず空間電荷が存在する限り、空間電荷電界は生じるし、空間電荷に影響される電気伝導現象と理解することができる。

T^* を前図と同様に 0.1 とし、初期電荷密度 P_0^* を大きくした場合の例として、 $P_0^*=5$ における電荷密度分布の経時変化を図 8 に示す。電荷群の電荷密度 P^* は初期値が $P_0^*=5$ であったにもかかわらず、コレクタへ到達すると

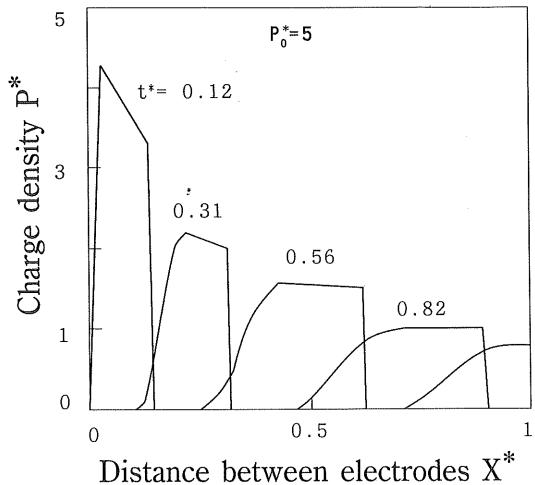


図 8 注入電荷量が多い場合のイオン空間電荷密度分布の経時変化

Fig. 8 Calculated charge density characteristics vs normalized distance from emitter for high charge injection.

きには 0.97 まで大幅に減少する。この値は初期値のわずか 19.4% である。特に、電荷注入直後に急激に減少する。また、注入直後の電荷群は空間的な広がりがないため同図上でパルス状の分布を示しているが、電荷群フロントがコレクタへ到達するときには台形状となり、その形が大きく変わっている。この電荷密度分布の時間変化と図 7 に示した $P_0^*=0.5$ における電荷密度分布の時間変化を比較するとわかるように、 P_0^* が大きくなると SCLC 現象に近づいていく。

5.3 電界分布の経時変化

パルス状電荷の時間幅 T^* および初期電荷密度 P_0^* を図 7 の場合と同一条件の $T^*=0.1$ および $P_0^*=0.5$ としたときの電界分布の経時変化を図 9 に示す。図に示した点線は、 $t^*=0$ における初期印加電界 $E^*(0)=1$ を示している。したがって、点線より E^* が高いところにある電荷は加速電界を受け、点線より低いところにある電荷は減速電界を受け。電界 E^* は電荷群の存在するところだけで変化し、電荷群の存在しないところは一定値となっている。 E^* が変化するところ、つまり、電荷群の幅は時間の経過と共に広くなっていることが同図からもわかる。また、図 7 に示したように電荷群の幅が広くなり、電荷密度の値も小さくなるのに伴い、 E^* の場所による変化は時間の経過と共に緩やかになっている。図は省略するが、 $P_0^*=5$ における E^* の経時変化を見ると上記現象はやはり現われており、電気伝導は ICLC 現象であることがわかる。

5.4 電流密度波形

パルス状電荷の時間幅 T^* を 0.1 とし、注入電荷密度をパラメータとして電流密度波形を図 10 に示す。横軸の $t^*=1$ は、注入された電荷が SCFC としてコレクタに到達

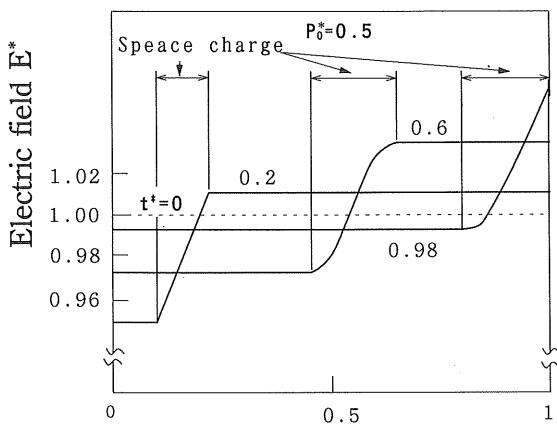
Distance between electrodes X^*

図 9 注入電荷量が少ない場合の電界分布の経時変化
Fig. 9 Calculated electric field characteristics vs normalized distance from emitter for low charge injection.

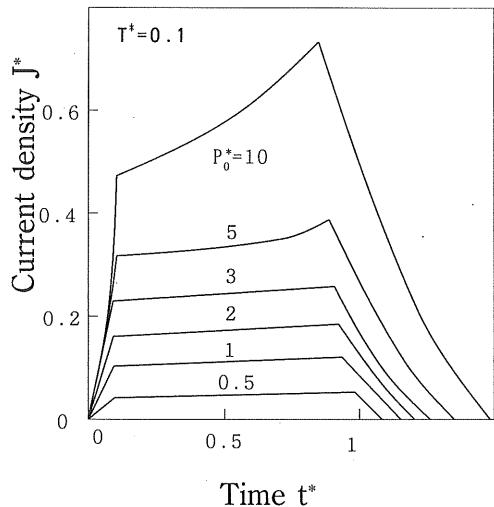


図 10 電荷に初速度がない場合のイオン過渡電流密度の波形
Fig. 10 Time dependence of calculated current density without initial charge velocity.

する時間である。 $P_0^*=0.5\sim 1$ としたとき、電荷群の移動時間域のほとんどにおいて電流密度波形は変わらず、低い高さの台形状を示す。このように電流密度波形だけからは一見 SCFC のように見えるが、電荷密度分布および電界分布の経時変化のところで述べたように ICLC 現象が起っており、厳密に図を見ればピークは見られるはずである。これまで、実験的手法を用いて同様な電流波形を測定した場合、SCFC として扱い、タイムオブフライト法により試料の移動度を計算することが行われてきたが、電流波形のみで SCFC と判断することはできないことがわかった。

$P_0^*=2\sim 10$ としたときの電流密度波形にはピークが現われている。 P_0^* を大きくすると、このピーク電流密度 J_m^* は大きくなり、ピーク電流密度発生時間 t_m^* は小さく

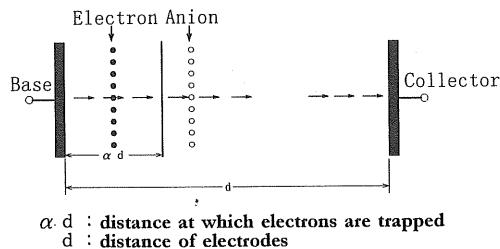


図 11 電荷に初速度がある場合の計算モデル

Fig. 11 Charge transfer aspect for calculation with initial charge velocity.

なる。また、 $P_0^*=10$ とした場合でも、 J_m^* と初期電流密度 J_0^* の比 J_m^*/J_0^* は 1.51 であり、連続的電荷注入時の 2.72 より小さくなっている。逆に t_m^* は 0.85 であり、連続注入時の 0.79 より大きくなっている。これらの結果は、連続的電荷注入時の数値解析法をパルス状電荷注入時の数値解析に適応した本シミュレーション法が正しいことを示している。なぜなら、 P_0^* の値が同じであれば、連続的電荷注入時よりパルス状電荷注入時の方が注入される電荷量が少なくなり、また、パルス状電荷注入時においては、多量の電荷注入が可能という条件が成り立たなくなり、SCLC 現象は起こらないからである。

しかし、3章実験結果に示したように J_m^*/J_0^* が 3.5~5.5、 t_m^* が 0.5~0.6 という実験値と上記のシミュレーション結果は大きな違いを示している。この違いを生じる原因是薄膜トンネルエミッタによる電荷注入機構にあるものと考えられる。

5.5 初速度を考慮した電流密度波形

前節までの計算モデルは、注入された電子は液体分子にすぐにトラップされ、イオンとして伝導することを仮定している。つまり、注入電子がトラップされるまでに進む注入距離を無視して計算している。薄膜トンネルエミッタにより注入される電子には初速度があることを2章に述べたが、初速度を持つ電子が注入されると注入距離が大きくなり、無視できなくなる。そこで、電子伝導とイオン伝導が混在するモデルを図 11 に示す。液体中における電子の移動度はイオンに比べてケタ違いの大きさであることはよく知られており、また、電子の運動量から考えると液体分子にトラップされたイオンに電子の初速度がそのまま引継がれることは考え難い。したがって、電子の走行時間はイオンの走行時間と比べると非常に小さくなり、無視することができる。同図に示すように電子の注入距離を αd とし、この空間における電子の挙動を無視し、電子が液体にトラップされる位置に P_0^* が注入されるモデルとした。ここで、 d は電極間距離、 α は注入距離の大きさを示す係数である。

図 10 と同様に T^* を 0.1 とし、 α を 0.3 としたときの注

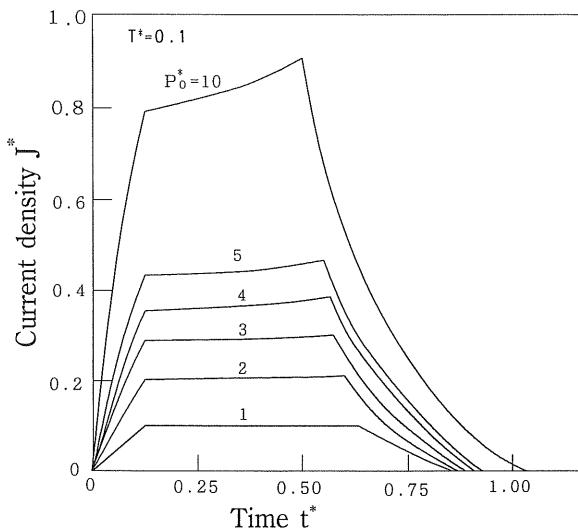


図 12 電荷に初速度がある場合のイオン過渡電流密度波形

Fig. 12 Time dependence of calculated current density with initial charge velocity.

入電荷密度をパラメータとした電流密度波形を図 12 に示す。同図には P_0^* を 1 から 10 まで変えて電流密度波形を描いた。図 10 と比較して、それぞれの P_0^* に対応する波形の形は類似している。すべての波形で J_m^* は大きく、 t_m^* は小さい結果が得られた。 t_m^* の値はおよそ 0.50 から 0.63 となり、実験結果の値とほとんど一致しており、初速度を考慮すると実験結果を説明できる。 P_0^* が大きくなると t_m^* は小さくなるが、 P_0^* がある値以上になると t_m^* はそれ以上小さくはならない。これは、3 章図 4 に示した V_{eb} が -8.0 から -11.1 V までの電流波形のピーク発生時間の実験結果と一致する。

しかし、同図の V_{eb} が -11.1 から -20.8 V までの電流波形に現れるピーク発生時間が大きくなることについてはシミュレーションできなかったので、その要因について検討したことを述べる。これまでの他の電荷注入法における注入電荷量は SCLC の境界条件 $E(0)=0$ を満たすものと考えられてきたが、初速度を持つ電子が注入される薄膜トンネルエミッタにおいては、エミッタ電極に加える負パルス電圧 V_{eb} をある値以上大きくすると SCLC の境界条件 $E(0)=0$ を満たすときの電子量より多くの電子が注入されることが考えられる。SCLC の境界条件を覆すような多量の電子が注入されるとベース電極近傍の電界は負になり、この逆方向の駆動電界中の電荷の挙動が全電荷の速度に何らかの影響を与えていることが考えられる。

J_m^*/J_0^* については、注入電荷量が多い場合の例である $P_0^*=5$ においても 1.45 であり、実験結果とはなお大きな違いを示している。このことについては以下の原因が考えられる。液体中の移動速度は印加電界が同じでも、

注入される電荷密度に大きく影響されること¹⁴⁾が知られている。すなわち、注入電荷量が小さい場合、電荷は液体分子間を μE という速度で移動するが、注入電荷量が大きい場合、電荷は周囲の液体を引きずり、この液体の動きが見かけの移動速度を速くする。実験結果においては、この見かけの移動度が電流波形に大きな影響を与えた可能性があるが、本シミュレーションでは、この見かけの移動度を考慮していないため、 J_m^*/J_0^* を小さくしたことが考えられる。また、電荷注入機構については前述した通りであるが、コレクタ電極表面の電位障壁についてはまだ良く知られておらず、電位障壁の存在によりコレクタ近傍に電荷が蓄積することが考えられる。本シミュレーションでは、コレクタに到達した電荷はすみやかにコレクタ側に吸収されることになっており、この相違が J_m^*/J_0^* の違いとなったことも考えられる。このことについては、まだ不明なことが多い、今後、いろいろな電気伝導機構について研究を進めたい。

6. まとめ

薄膜トンネルエミッタを用いた絶縁液体中の電気伝導現象に対して、直流ステップ電圧が加えられた平行平板電極間にパルス状の電荷を注入するモデルを作り、シミュレーションを行った。得られた主な結果を以下に要約する。

- 1) パルス電荷注入における電気伝導現象は注入電荷量により制限される伝導 (ICLC) であることが明らかとなった。
- 2) パルス電荷密度が小さい場合、電流密度波形は SCFC に類似するが、時間の経過とともに電荷群の電荷密度は小さくなり、幅が広くなることから電極間で起きている現象は SCFC ではない。
- 3) 電流密度波形はパルス電荷密度が大きい場合ピークが現れることでは SCLC に類似するが、すべての波形が SCLC とは限らない。
- 4) 初期電流値で規格化したピーク電流値および SCFC による電荷到達時間で規格化したピーク電流発生時間は一定値を示すとこれまで考えられてきたが、ICLC として考えれば、これらの値はそれぞれの最大値および最小値であり、注入電荷量により、どちらも変化することがわかった。
- 5) 電流密度波形に現れるピークの発生する時間は、薄膜トンネルエミッタから注入された電荷が初速度を持つとして計算した場合のみ実験結果と一致する。
- 6) 同モデルにおいては、多量の電荷が連続的に注入されたときのみ、電流密度波形は SCLC の波形とほぼ一致する。

参考文献

- 1) O.H. Le Blanc : J. Chem. Phys., **30** (1959) 1443
- 2) Y. Sakai, H. Bottcher and W.F. Schmidt : J. Electrostatics, **12** (1982) 89
- 3) O. Gzowski : Nature, **194** (1962) 173
- 4) G. Coe, J.F. Hughes and P.E. Secker : Br. J. Appl. Phys., **17** (1966) 885
- 5) M. Silver, D.G. Onn and P. Smejtek : J. Appl. Phys., **40** (1969) 2222
- 6) C.A. Mead : J. Appl. Phys., **32** (1961) 646
- 7) 土田縫夫, 上田 實: 電気学会論文誌 A, **99** (1979) 535
- 8) 石井新之助, 土田縫夫, 大橋朝夫, 水野幸男, 小崎正光: 静電気学会誌, **17** (1993) 117
- 9) A. Many and G. Rakavy : Phys. Rev., **126** (1962) 1980
- 10) M. Zahn : IEEE Trans. Electr. Insul., **11** (1976) 150
- 11) 岩本光正, 日野太郎: 電気学会論文誌 A, **101** (1981) 526
- 12) 中村岩美, 佐藤淳: 電気学会論文誌 A, **101** (1981) 301
- 13) P. Atten and J. P. Gosse : J. Chem. Phys., **51** (1969) 2804
- 14) S. Sakamoto and H. Yamada : IEEE Trans. Electr. Insul., **15** (1980) 171
- 15) 新美達也: トランジスタおよびダイオード, p. 135, 丸善 (1967)