

.....
 論 文

高分子粉体試料の固有熱刺激電流スペクトル導出

池崎和男*, 村田雄司**

(2005年8月1日受付; 2005年11月11日受理)

Derivation of Intrinsic Thermally Stimulated Current Spectra of Polymeric Powder Samples

Kazuo IKEZAKI* and Yuji MURATA**

(Received August 1, 2005; Accepted October November 11, 2005)

For polymeric powder samples, we proposed a general method to obtain their intrinsic thermally stimulated current (TSC) spectra, I_{TSC} , from which erroneous TSC component due to change in sample thickness during TSC observation was eliminated. The method utilizes a current signal I_{obs} obtained experimentally from current TSD with an air gap or a voltage signal V_{obs} obtained from charge TSD in open-circuit, sample thickness d of powder samples and relative dielectric constant ϵ_r of their matrix polymers. In both cases using I_{obs} or V_{obs} , derivation of I_{TSC} is executed by an approximation of iteration. As a trial, we applied this method to a binder resin of toner for copiers and also to a powder paint for electrostatic powder coating. Computed spectra for these powder samples were found to converge practically to their intrinsic TSC spectra within 5 times iterative calculations for the resin and 2 times for the paint, respectively.

1. はじめに

熱刺激電流 (TSC) スペクトルコピーは通常フィルム状試料に使われる。これを、複写機用トナーや静電粉体塗装用塗料など高分子粉体系に適用するときは、粉体試料系特有の問題を検討しておく必要がある。一つは、再現性であり、もう一つは、TSC 測定中の試料粉体層熱変形の影響である。

実電荷 TSC では、トラップされていた電荷の脱トラップとそれに続く脱トラップ電荷の移動が不可欠であるが、電荷輸送過程が粉体層の粒子充填構造に依存するので再現性が低いと考えがちである。しかし、絶縁性高分子粉体試料の TSC では、電荷輸送過程は律速過程ではなく、粉体系 TSC の再現性は極めてよいことを報告¹⁾した。

そこで、次に検討すべき課題は TSC 測定中に生じる試料粉体層厚の変化が TSC に与える影響についてである。また、その影響を取り除いて試料粉体固有 TSC (intrinsic TSC) を導出することである。フィルム状試料の双極子 TSC に与え

る、試料の厚さ変化の影響については報告²⁾されているが、実電荷 TSC では全く問題にされていない。

一方、粉体試料では TSC 測定中の試料厚さの変化が著しく大きく、この影響は無視できないと考え、試料粉体層厚変化の影響を除く TSC スペクトル修正法について一つの試み^{3,4)}を報告した。しかし、その修正法は、求めるべき試料粉体固有 TSC スペクトルが、二つの修正スペクトルのあいだにあることを示すだけのものではなかった。

本研究は、この試料粉体層厚変化の問題をより一般的に扱い、観測された TSC データから、反復計算法 (iteration) の近似により一つの修正スペクトルに収束させる方法に関するものである。

2. 反復計算法による TSC スペクトル導出

高分子粉体系に利用できる、実電荷 TSC 測定回路は図 1 a に示す開回路 TSC (open-circuit TSC) と、図 1 b の電荷 TSD の測定回路に限られる。図 1 b の回路で、試料表面と上部電極間の間隔を周期的に変化させると、試料表面電位と上部電極電位が異なるときは試料・上部電極間電界が零でないため、外部回路に交流電流が流れる。交流電流検出回路 (図 1 b にはこの回路は省略されている)でこの交流電流を検出し、それが零になるように、直流電圧発生器で作られたバイアス電圧を電極間に印加する。試料表面電位はそのときのバイアス電圧から求められる。電荷 TSD スペクトルは、このようにして求めた試料表面電位を温度の関数

キーワード: 熱刺激電流, 固有スペクトル, 高分子粉体, 試料厚さ, 反復計算法近似

*慶応義塾大学 (108-8345 東京都港区三田 2-15-45)
Keio University, 2-15-45, Minato-ku, Tokyo, 108-8345
Japan ikezaki@khaki.plala.or.jp

**東京理科大学理工学部(278-8510 千葉県野田市山崎 2641) Faculty of Science and Technology, Tokyo University of Science, 2641, Yamazaki, Noda 278-8510 Japan
murata@ee.noda.tus.ac.jp

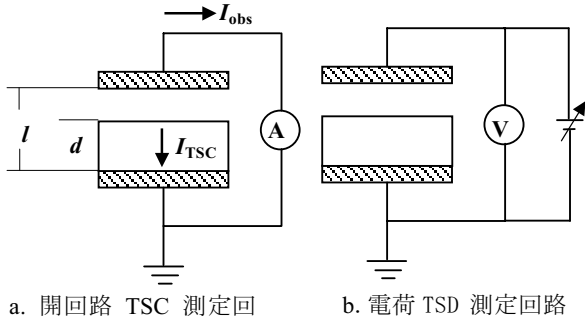


図1 粉体試料測定用回路
Fig.1 Measuring circuit for powder samples.

としてあらわしたものである。

バイアス電圧は上部電極に印加する場合と下部電極に印加する場合が考えられる。フィルム状試料では、音波により試料を直接振動させて試料・上部電極間距離を周期的に変化させることが可能なので、バイアス電圧を試料下部電極に印加して、交流電流は上部電極で検出するという方法⁵⁾が知られている。また、バイアス電圧は上部電極に印加して、上部電極中央部に開けた小穴に振動電極を置き交流電流を検出してバイアス電圧を制御する方法⁶⁾などがある。粉体試料に対して、市販の非接触型表面電位計をそのまま利用した電荷 TSD の試行例⁷⁾も報告されている。

本研究では、高分子粉体試料に対して図1 a および図1 b の、二つの測定系で観測される電流信号および電圧信号から、試料粉体粒子固有の TSC スペクトルを導出する方法について考える。

2.1 開回路 TSC 測定系

図1 a に示す試料粉体層・電極系で、TSC 観測用電極に誘導される電荷 Q_{ind} は次式であたえられる。

$$Q_{ind} = \frac{-Q}{1 + [(l/d) - 1]\epsilon_k} \quad (1)$$

ここで、 d および ϵ_k は試料粉体層の厚さと比誘電率であり、 l は電極間距離である。また、簡単化のため、試料粉体層には表面電荷 Q があるとしている。したがって、 γ を次式のようにおけば、

$$\gamma = \frac{1}{1 + [(l/d) - 1]\epsilon_k} \quad (2)$$

(1)式は次のように表される。

$$Q_{ind} = -\gamma Q \quad (3)$$

(3)式の γ は試料に存在するトラップ電荷量と測定用電極へ誘導される電荷量の比を表すもので、これを感度係数とよ

ぶことにする。

粉体粒子および空気の2相構造である試料粉体層の厚さ d が温度により変化すれば、粉体層の充填率も変化するため、試料粉体層の比誘電率 ϵ_k も変化する。したがって、(2)式からわかるように、感度係数 γ は試料温度上昇にともない変化する。

試料粉体固有の TSC を I_{TSC} 、図1 a の開回路系で観測される電流を I_{obs} とおき、試料昇温速度を β の一定速度とすれば、

$$I_{TSC} = -dQ/dt = -\beta dQ/dT \quad (4)$$

$$I_{obs} = -dQ_{ind}/dt = -\beta dQ_{ind}/dT \quad (5)$$

である。(3)式を温度 T で微分し、(4)、(5)の関係を使うと次式が得られる。

$$I_{TSC} = -\frac{I_{obs}}{\gamma} + \beta Q \frac{d \ln \gamma}{dT} \quad (6)$$

温度の関数として I_{obs} 、 γ 、 Q がわかれば、(6)式から試料固有の TSC スペクトルが得られる。

(6)式の Q は温度 T で試料に残存する電荷量なので次式で与えられる。

$$Q(T) = \frac{1}{\beta} \left[\int_{T_0}^{T_F} I_{TSC} dT - \int_{T_0}^T I_{TSC} dT \right] \quad (7)$$

(7)式右辺の T_0 および T_F は、それぞれ、TSC 測定開始温度および観測される TSC が零になる TSC 終了温度である。(7)式を(6)式に代入することにより、

$$I_{TSC}(T) = -\frac{I_{obs}(T)}{\gamma} + \left[\int_{T_0}^{T_F} I_{TSC} dT - \int_{T_0}^T I_{TSC} dT \right] \frac{d \ln \gamma}{dT} \quad (8)$$

が得られる。

(8)式の右辺には求めるべき試料固有 TSC I_{TSC} が含まれているため、この式から直接試料固有の TSC を求めることはできない。そこで、反復計算法を利用して、近似的に求めることにする。

まず、 $-I_{obs}/\gamma$ を反復計算法の初期値として、(8)式右辺積分項の被積分関数 I_{TSC} に代入し、(8)式右辺を計算する。その計算結果を $I_{TSC}^{(1)}$ とおき(8)式左辺の値とする。つぎに、この $I_{TSC}^{(1)}$ を再び(8)式右辺積分項の被積分関数に代入して計算した結果を $I_{TSC}^{(2)}$ とおき(8)式左辺の値とする。このよ

うな操作を n 回繰り返すと次の関係が得られる。

$$I_{TSC}^{(n)} = -\frac{I_{obs}}{\gamma} + I_c^{(n-1)} \quad (n \geq 1) \quad (9)$$

ここで、

$$I_c^{(n-1)} = \left[\int_{T_0}^{T_F} I_{TSC}^{(n-1)} dT - \int_{T_0}^T I_{TSC}^{(n-1)} dT \right] \frac{d \ln \gamma}{dT} \quad (10)$$

$$I_{TSC}^{(0)} = -\frac{I_{obs}}{\gamma} \quad (11)$$

である。試料固有の TSC I_{TSC} は (9) 式の反復計算を繰り返して、

$$I_{TSC}^{(n)} \cong I_{TSC}^{(n-1)} \quad (12)$$

に収束するまで実行して近似解として求める。

2.2 電荷 TSD 測定系

図 1b の測定系では、観測される物理量は試料の表面電位 V_s である。開回路 TSC 測定系の場合と同様に、試料粉体層には表面にトラップ面電荷 Q を仮定する。ケルビン法による表面電位測定計を用いた観測電位 V_{obs} は試料表面と測定用プローブ間の距離に依存せず

$$V_{obs} = V_s = dQ / A \epsilon_0 \epsilon_k = \gamma_V Q / A \quad (13)$$

で与えられる。ただし、 A は試料面積、 ϵ_0 は真空の誘電率であり、 γ_V は

$$\gamma_V = d / \epsilon_0 \epsilon_k \quad (14)$$

である。また、 γ_V は観測される表面電位 V_{obs} と試料粉体層のトラップ電荷 Q を結びつける係数で、開回路 TSC の場合と同じように、感度係数とよぶことにする。試料表面電位から求める試料粉体固有の TSC を開回路 TSC 測定系で求めたものと区別するために、添字 v を追加して、 $I_{TSC,v}$ と表すことにする。そうすると、試料固有の TSC $I_{TSC,v}$ は(4)式と同形の次式で表される。

$$I_{TSC,v} = -dQ / dt = -\beta dQ / dT \quad (15)$$

電荷 TSD 測定系の場合も、試料粉体層の厚さ d が温度上昇により変化すると、 ϵ_k も変化するため観測値 V_{obs} を微分して直ちに $I_{TSC,v}$ を求めることはできない。

(13)式を温度 T に関して微分して、(15)の関係を使うと、

$$I_{TSC,v} = -\frac{1}{\gamma_V} \left[\beta A \frac{dV_{obs}}{dT} \right] + \beta Q \frac{d \ln \gamma_V}{dT} \quad (16)$$

(16)式は開回路 TSC 測定系で求められた試料固有の TSC の表現式と右辺第 1 項を除き同じであり、(16)式右辺第 1 項もディメンジョン的には電流であるから、物理的には同じ内容を表している。(6)式は観測電流値から導いたものであり、(16)式は観測した表面電位から導いたもので、両式は同じ内容を示すのは当然のことである。したがって、(16)式右辺の電荷 Q も(7)式と同形の式、

$$Q(T) = \frac{1}{\beta} \left[\int_{T_0}^{T_F} I_{TSC,v} dT - \int_{T_0}^T I_{TSC,v} dT \right] \quad (17)$$

となる。(16)および(17)式から試料粉体固有の熱刺激電流 $I_{TSC,v}$ を求めると、

$$I_{TSC,v} = -\frac{1}{\gamma_V} \left[\beta A \frac{dV_{obs}}{dT} \right] + \left[\int_{T_0}^{T_F} I_{TSC,v} dT - \int_{T_0}^T I_{TSC,v} dT \right] \frac{d \ln \gamma_V}{dT} \quad (18)$$

となり、開回路 TSC の場合の(8)式と内容的には同じである。したがって、(18)式の場合も反復計算法により試料粉体粒子固有の TSC スペクトルを近似的に求めることができる。すなわち、

$$I_{TSC,v}^{(n)} = -\frac{1}{\gamma_V} \left[\beta A \frac{dV_{obs}}{dT} \right] + I_{c,v}^{(n)} \quad (n \geq 1) \quad (19)$$

$$I_{c,v}^{(n-1)} = \left[\int_{T_0}^{T_F} I_{TSC,v}^{(n-1)} dT - \int_{T_0}^T I_{TSC,v}^{(n-1)} dT \right] \frac{d \ln \gamma_V}{dT} \quad (20)$$

$$I_{TSC,v}^{(0)} = -\frac{1}{\gamma_V} \left[\beta A \frac{dV_{obs}}{dT} \right] \quad (21)$$

である。この場合も(19)式の反復計算を、

$$I_{TSC,v}^{(n)} \cong I_{TSC,v}^{(n-1)} \quad (22)$$

に収束するまで繰り返して近似解を求めることができる。

ここで、電流信号と電圧信号のいずれを利用したほうが試料粉体層厚変化の影響が小さいか検討してみる。電流信号および電圧信号に対する相対感度係数 $\gamma'(T)$ および $\gamma'_v(T)$ を次式で定義する。

$$\gamma'(T) = \frac{\gamma(T)}{\gamma(0)} \quad (23)$$

$$\gamma'_v(T) = \frac{\gamma_v(T)}{\gamma_v(0)} \quad (24)$$

そうすると, (23), (24) 式で表された相対感度係数の比は, (2) および (14)式を使って,

$$\frac{\gamma'(T)}{\gamma'_v(T)} = \frac{1 + [(l/d(0)) - 1]\epsilon_k(0) \cdot \frac{d(0)}{d(T)} \cdot \frac{\epsilon_k(T)}{\epsilon_k(0)}}{1 + [(l/d(T)) - 1]\epsilon_k(T)} \quad (25)$$

電流信号に対する感度係数の分母の最初の項 1 が $[(l/d) - 1]\epsilon_k$ に対して無視できるとき, (25)式は簡単になって,

$$\frac{\gamma'(T)}{\gamma'_v(T)} = \frac{l - d(0)}{l - d(T)} \quad (26)$$

となる. 温度上昇とともに試料粉体層の厚さは変化するが,

$$d(0) > d(T) \quad (27)$$

が成り立つ温度領域では, (26)と(27)式から,

$$\gamma'(T) < \gamma'_v(T) \quad (28)$$

となる. 相対感度係数が 1 に近いほど温度上昇に伴う感度係数の変化が小さいことを意味する. したがって, $\gamma'_v(T)$ が 1 より小さい場合は, (28)式から $\gamma'_v(T)$ のほうが $\gamma'(T)$ よりも 1 に近い. すなわち, V_{obs} 測定のほうが I_{obs} 測定よりも, 粉体層比誘電率の粒子充填構造依存性には関係なく, 昇温による試料粉体層厚変化の影響が小さいことがわかる.

3. 反復計算の実行

3.1 試料粉体層の誘電率

反復計算を実行して, 電流信号 I_{obs} から粉体粒子固有の TSC スペクトル I_{TSC} を求めるために必要な試料粉体層比誘電率 ϵ_k は次式により計算した.

$$\epsilon_k = 1 + (\epsilon_r - 1)v \quad (29)$$

粒子系の誘電率は, 粒子間相互作用を無視すれば粒子濃度と粒子の分極率の積に依存する. したがって, 粉体粒子の充填構造を無視すれば, 充填率の増加は単に粒子濃度の増加を意味する. すなわち, (29)式は粒子充填構造を無視したものである.

3.2 計算に使用するデータ

本研究では, 複写機トナー用バインダー樹脂および静電粉体塗装用塗料を用いて, 粉体粒子固有の TSC スペクトル

の導出を試みた. 使用したデータは次の通りである.

- (1) 開回路 TSC 測定系で実測した TSC 信号 I_{obs}
- (2) 試料粉体層の厚さ d : レーザ変位計で実測
- (3) 試料粉体層の粒子充填率 v
- (4) 試料粉体粒子の比誘電率 $\epsilon_r = 3$
- (5) I_{obs} 測定時の電極間距離 $l = 4 \text{ mm}$

なお, 使用したバインダー樹脂のガラス転移温度は約 65°C であり, また, バインダー樹脂の分子量分布も参考のため調べた.

上記のデータを使って近似計算を実行するため, 温度変数を共通にした. すなわち, I_{obs} および d の実測データを使用して, 0.5°C 刻みの共通温度に対する, それらの値を補間法により求めた. これらを図 2 および図 3 に示しておく.

図 2 はトナー用バインダー樹脂のものであり, 図 3 は静電

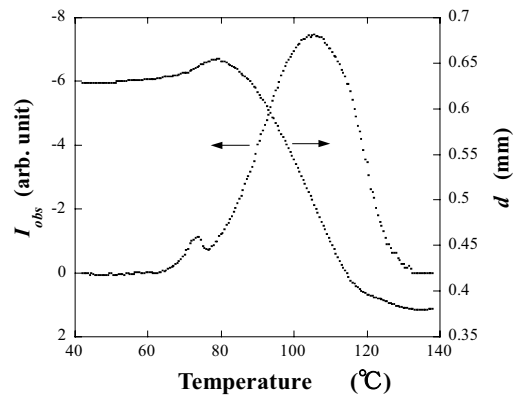


図 2 バインダー樹脂の I_{obs} と試料厚さ d
Fig.2 I_{obs} and d for the binder resin.

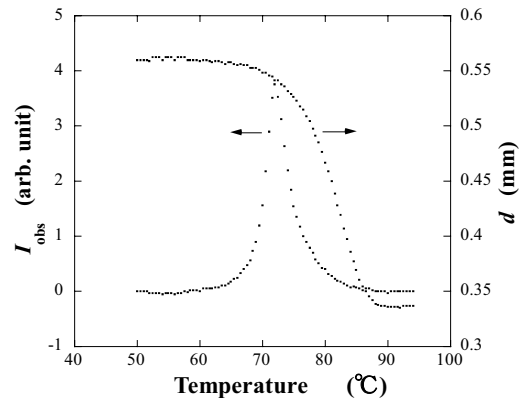


図 3 粉体塗料の I_{obs} と試料厚さ d
Fig.3 I_{obs} and d for the powder paint.

塗装用粉体塗料のものである.

試料粉体層の厚さ d の測定は, 試料作成および昇温速度など全て TSC 測定と同じ条件で行った. すなわち, 同一形状の試料容器に, バインダー樹脂では 120 mg , 粉体塗料

のばあいには 150 mg の試料粉体を 5.4 MPa で加圧成型して試料とした。この試料を TSC 測定と同じ 3.5 °C/min の一定昇温速度で加熱して、 d の温度変化を分解能 3 μ m のレーザー変位計で測定した。

また項目(3)の、試料粉体層の粒子充填率は次式にしたがって計算した。

$$v = d^* / d \quad (30)$$

ここで、 d^* は試料粉体が溶融して空気相がなくなり充填率が 1 に対応したときの試料厚である。

項目(4)の粒子比誘電率を 3 にした根拠は、使用したバインダー樹脂がスチレン・アクリル系のものであることから、ポリスチレンの比誘電率 2.6⁸⁾ およびポリメチルメタクリレートの 3.1⁸⁾ を考慮した結果である。また、静電塗装用塗料に対しては特別の理由はない。粒子比誘電率の温度依存性はバインダー樹脂および粉体塗料いずれの場合も考慮していない。

一般に、無極性高分子の分極は電子分極が主であるから、誘電率の温度依存性はない。しかし、実際は温度上昇に伴う膨張のため密度が低下し、その結果誘電率は温度とともに減少する傾向にある^{9, 10)}。また、有極性高分子は、ガラス転移温度以上の温度領域では絶対温度の逆数に比例して減少するはずであるが、これも、現実には双極子間、あるいは、双極子とその周囲分子との相互作用に温度依存性があるために、むしろ増加することがある。したがって、無極性高分子と有極性高分子を適当な割合で混合したものの比誘電率はある温度範囲では温度依存性をもたなくすることも可能といわれている¹¹⁾。

われわれが使用したバインダー樹脂は極性高分子と無極性高分子の混合物であり、誘電率に与える温度効果は互いにうち消す傾向にあるものと思われるが、具体的には不明である。

使用したバインダー樹脂の分子量分布は、 3×10^3 程度の分子量をピークとする低分子量成分と、 3×10^5 程度の分子量をピークとする高分子量成分がおおよそ 3 対 1 程度の比率で混合されていることがわかった。すなわち、このバインダー樹脂は低温で定着可能な低温溶融樹脂であるにもかかわらず、帯電電荷は樹脂が溶着直前まで維持できるように工夫されたものと思われる。

4. 計算結果とその考察

試料粉体層比誘電率と粒子充填率の関係が(29)式で与え

られると仮定して計算した結果を図 4、および図 5 に示す。図 4 はバインダー樹脂の計算結果であり、図 5 は静電粉体塗装用塗料のものである。これらの図の中には、参照用として、観測データ I_{obs} も示してある。ただし、 I_{obs} は比較しやすくするために、極性を反転しその強度も図 4 では $I_{TSC}^{(5)}$ と、図 5 では $I_{TSC}^{(2)}$ と、バンドの面積が同じ程度になるよ

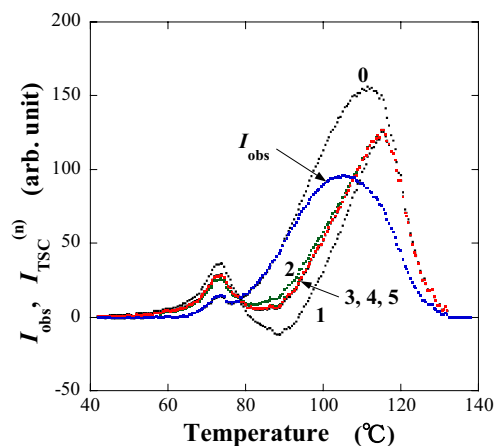


図 4 バインダー樹脂の I_{obs} , $I_{TSC}^{(n)}$. 図中の数字は反復計算の回数 n

Fig.4 I_{obs} and $I_{TSC}^{(n)}$ for the binder resin. Numerals in the figure represent the number n of iterative calculations.

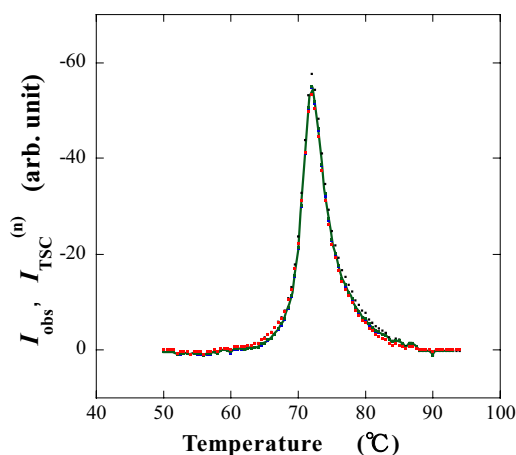


図 5 粉体塗料の I_{obs} と $I_{TSC}^{(n)}$ 反復計算 2 回の $I_{TSC}^{(2)}$ と I_{obs} のスペクトルの形はほとんど区別できない。

Fig.5 I_{obs} and $I_{TSC}^{(n)}$ for the powder paint. Difference in spectral shape between $I_{TSC}^{(2)}$ and I_{obs} was hardly observed.

うに一定倍してある。図 4 からわかるように、収束した試料固有 TSC スペクトルの主バンドのピーク温度は観測されたスペクトル I_{obs} のものより約 10°C 高温側にシフトして、試料厚変化の影響を排除した修正スペクトルはこの

樹脂の特徴を反映していることがわかる。また、分子量分布に特徴を持つこのバインダー樹脂の場合でも、反復計算を5回ほど行えば I_{TSC} は収束することが図4からわかる。

一方、静電粉体塗装用塗料の場合は、図5からわかるように、TSC スペクトルの相対的形は反復計算の結果得られた収束値と I_{obs} はほとんど同じで、試料粉体層厚変化の影響は小さく確認できなかった。

最後に、粉体試料に対する TSC 測定を、 I_{obs} を観測する電流測定と、 V_{obs} を測定する電圧測定の得失を考えるために、バインダー樹脂の層厚 d の実測温度依存性を用いて (23), (24), (25) および (26) の各式を計算した。なお、(23), (24), (25) の各式の数値計算に必要な ϵ_k の値は (29) 式を用いて求めた。数値計算の結果を図6に示す。(25) および (26) 式の数値計算の結果は、ケルビン法の表面電位計による表面電位測定のほうが試料粉体層厚変化の影響はわずかに小さいが、(23) と (24) 式の数値計算の結果を直接比較すると、それらはほとんど同じであることがわかる。

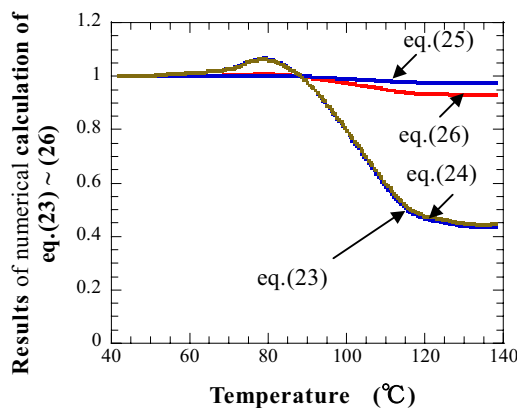


図6 バインダー樹脂に対する電流信号の相対感度係数と電圧信号の相対感度係数およびそれらの比の数値計算

Fig.6 Numerical calculations of relative sensitivity for current and voltage TSC signals, and of their ratio.

5. 結論

試料表面電位から TSC スペクトルに変換する電圧測定法と、TSC を直接測定する電流測定法に対して、反復計算近似法を用いることにより、TSC 信号測定中の試料厚変化の影響を排除した試料固有 TSC スペクトルを導出する一般式を導いた。また、トナー用バインダー樹脂および静電粉体塗装用塗料にこの手法を試行的に適用した結果、試料の分子量分布に特異性をもつバインダー樹脂の場合でも、4 ~ 5 回の反復計算を行えば収束し、試料固有 TSC スペクトルが得られた。得られた試料固有 TSC スペクトルはこの樹

脂が熔融直前まで電荷を保持できるという特徴をよく説明できるものであった。

一方、TSC が観測される温度域で大きな試料厚変化がみられなかった粉体塗料の場合は、観測された TSC スペクトルと試料固有 TSC スペクトルは、極性と強度の点を除けばほとんど同じであった。

以上のことから、高分子粉体試料では、実測される TSC 信号の出現温度域で試料厚さ変化が大きいときは、観測された TSC スペクトルに与える試料厚さ変化の影響は大きく、また、TSC 信号の出現温度域で試料厚さ変化が小さいときは、観測された TSC スペクトルに与える試料厚さ変化の影響は小さいことが確認された。

また、試料表面電位を測定する電圧法、TSC を直接測定する電流法、いずれの場合も観測結果は TSC 信号測定中の試料厚さ変化の影響を同じ程度受けることが数値計算の結果明らかになった。

本研究を行うにあたり TSC スペクトルおよび粉体層厚測定をしていただいた桑原論次君およびバインダー樹脂の DSC と分子量分布の調査をしていただいた堀健志氏に感謝します。

参考文献

- 1) T. Hori and K. Ikezaki: *J. Electrostatics*, **40 & 41** (1997) 313
- 2) J. Vanderschueren, M. Ladang, J. Niezette and M. Corapci: *J. Appl. Phys.*, **58** (1985) 4654
- 3) 桑原論次, 池崎和男: 2000 年度静電気学会講演論文集, p.229 (2000)
- 4) 桑原論次, 池崎和男: 2002 年度静電気学会春期講演会論文集, p.7 (2004)
- 5) J. van Turnhout: *Electrets*, ed. G.M. Sessler, p.171, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1980)
- 6) 上原利夫: 静電気学会誌, **13** (1989) 284
- 7) 杉原鷹雄, 竹内学: 2005 年度静電気学会春期講演会論文集, p.47 (2005)
- 8) 和田八三久: 高分子の電気物性, p.13, 裳華房, 東京 (1987)
- 9) R. Bartnikas: *Electrical Properties of solid Insulating Materials: Molecular Structure and Electrical Behavior*, ed. R. Bartnikas and R.M. Eichhorn, p.92, ASTM, Philadelphia (1983)
- 10) P.J. Phillips: *Electrical Properties of solid Insulating Materials: Molecular Structure and Electrical Behavior*, ed. R. Bartnikas and R.M. Eichhorn, p.205, ASTM, Philadelphia (1983)
- 11) C.C. Ku and R. Liepins: *Electrical Properties of Polymers*, p.55, Hanser Publishers, Munich, Vienna, New York (1987)