第8章

T.S.C.による電荷分布の決定法

簡単のため深いトラップは考えない。ψ_0 及び ψ_d は、

$$\psi_0 = F_0(\psi_0 \tau + \int_0^\tau g\, d\tau)$$

$$\psi_d = F_0(d + \psi_d \tau + \int_0^\tau g\, d\tau)$$

を満足するから，ψ_0，ψ_d，$\psi_0\tau + \int_0^\tau g\, d\tau$，$\psi_d\tau + \int_0^\tau g\, d\tau$ などの量が知られるならば、初期の電界分布を決定できることになる。

$$\psi_0 > \psi_d$$

$$\lim_{\tau\to\infty} \psi_0 = \lim_{\tau\to\infty} \psi_d$$

である事は前に見たとおりであるから、全ての時刻に対して，上の量が分かっていれば，全ての点における電界を求められる。実験にどのような量を知らなければならないかを考察する。以前に述べたように、T.S.C. $I(T)$ と g は対応して，その関係は、

$$g = \frac{1}{\beta\varepsilon}\int_{T_0}^{T} I(T)\, dT$$

逆に言えば，$I(T)$ からは、g のみが決定されるという事である。従って，ψ_0 ψ_d を求めるためには、$I(T)$ つまりT.S.C.のみでは不十分であり，他の量を実験的に独立に測定しなくてはならない。

$$I(T) = \varepsilon\mu^* \frac{dg}{d\tau} = \frac{\varepsilon\mu^*}{2d}(\psi_0 - \psi_d)(\psi_0 + \psi_d + 2g)$$

$$= \frac{\varepsilon\mu^*}{2d}(F^2_{(0,t)} - F^2_{(d,t)})$$

$$= \frac{\mu^*}{2d\varepsilon} Q^2_{total} \cdot (1 - 2\frac{\bar{x}}{d})$$

という関係がある事に注意する。ただし，Q_{total} は t における全電荷，$\bar{x}$ は平均注入距離と呼ばれ，次のように定義されるものである。

$$\bar{x} = \frac{\int_0^d x\,\rho(x)\,dx}{\int_0^d \rho(x)\,dx}$$

従って，ψ_0, ψ_d, I が仮りに知られているならば，$F(0,t) = \psi_0 + g$ という関係により，$F(0,t)$, $F(d,t)$ が求まり，同時に Q_{total}, $\bar{x}$ を知る事もできる。逆に，$F(0,t)$, $F(d,t)$ 又は，Q_{total}, $\bar{x}$ が分かっているならば，ψ_0, ψ_d をただちに求める事ができる。いずれの場合でも，μ^* が求められる事は明らかである。

従って，電荷分布を求めるためには，$I(T)$, Q_{total}, $\bar{x}$ を知る事が必要にして，最少限である。あらかじめ，これらの量が知られている時に，分布の決定が矛盾なく行なわれるためには，これらのデータがある制限を満足するものでなくてはならない。例えば，Q_{total} が時間的に増加するようなものは，この場合には，許されない。または，$I(T) = 0$ となるような温度 T が存在する場合には，その温度で $\bar{x}/d = 1/2$ でなくてはならないのは，上式より明らかである。もちろん，これらは実験の精度内でのことである。

それでは，$I(T)$, Q_{total}, $\bar{x}$ の間に満足されるべき制限について考えよう。

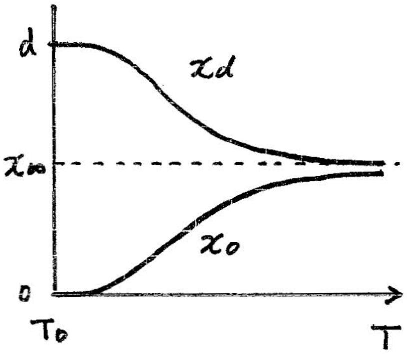
$$x_\infty = \lim_{\tau\to\infty}\left(\psi_0\tau + \int_0^\tau g\,d\tau\right) = \lim_{\tau\to\infty}\left(d + \psi_d\tau + \int_0^\tau g\,d\tau\right)$$

として，x_∞ を定義する。

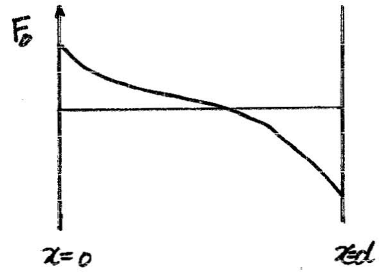
$$x_0(\tau) = \psi_0\tau + \int_0^\tau g\,d\tau \;,\quad x_d(\tau) = d + \psi_d\tau + \int_0^\tau g\,d\tau$$

とおけば，$x_0(\tau)$, $x_d(\tau)$ は右図のように変化しなくてはならない。よって一つの条件として

$$\frac{d}{d\tau}x_0 > 0 \;,\quad \frac{d}{d\tau}x_d < 0$$



単一負注入電荷の場合，初期の電界分布の形は右図のようになる。$\psi_0 = F_0(x_0)$ の関係があり，さらに，x_0 は前述のように変化する事から，ψ_0は減少しなくてはならない。ψ_dは同様に増加しなくてはならない。よって第二の条件として



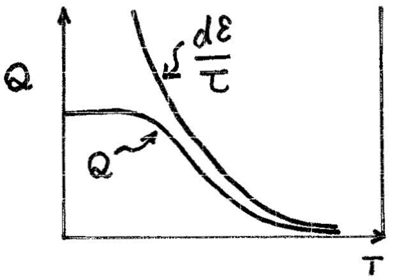
$$\frac{d\psi_0}{d\tau} < 0 \quad , \quad \frac{d\psi_d}{d\tau} > 0$$

電界分布が一意的となるために，$x_0 < x_d$ でかつ $\lim_{\tau\to\infty} x_0 = \lim_{\tau\to\infty} x_d$ でなくてはならない。これが第三の条件である。第一と第二の条件をまとめて

$$0 > \frac{d\psi_0}{d\tau} > -\frac{\psi_0 + g}{\tau}$$

$$0 < \frac{d\psi_d}{d\tau} < -\frac{\psi_d + g}{\tau}$$

さらに第三条件は右図のように，温度上昇に伴って，$d\varepsilon/\tau$ がQに上から漸近する事と言い換えられる。第一，第二の条件は，観測される量と結びつけた方がより便利である。界面における電界 $F(0,\tau)$，$F(d,\tau)$，及び I を用いて



$$\frac{I}{\varepsilon\mu^*} > \frac{dF(0,\tau)}{d\tau} > -\frac{F(0,\tau)}{\tau} + \frac{I}{\varepsilon\mu^*}$$

$$\frac{I}{\varepsilon\mu^*} < \frac{dF(d,\tau)}{d\tau} < -\frac{F(d,\tau)}{\tau} + \frac{I}{\varepsilon\mu^*}$$

これらの条件は Q_{total}，$\bar{x}$ を用いて容易に書き換えることができる。

第三の条件は，x_∞ における電界の連続性に関連しているが，電界のより高次の微分の連続性も考えることができる。以前漸近形の所で求めたような形式にψ_0, ψ_d, g などが表わされる事がそのための条件となるのだが，一般に，各々のべきの寄与を分離して取り出す事は，実験的に制限があり，高次

のものほど困難となる。最低次では、

$$\psi_0 = -g_\infty + \frac{d}{2(\tau+e_0)} \quad , \quad \psi_d = -g_\infty - \frac{d}{2(\tau+e_0)}$$

と表わされる事は前に見たとおりである。このように表わされるという事は、x_∞ において、電荷密度が連続である事を示すので、十分な高温においては、ψ_0, ψ_dがこのように表わされる事を要求するのは、物理的に妥当であり、かつまた、必要でもあろう。このように表わされる温度範囲では、Q_{total} は

$$Q_{total} = \varepsilon(\psi_0 - \psi_d) = \frac{d\varepsilon}{\tau+e_0} < \frac{d\varepsilon}{\tau}$$

となり才三の条件は自動的に満足される。従って、才三の条件と、電荷密度がx_∞ で連続であるための条件は、十分な高温では、$F(0,t)$, $F(d,t)$ が

$$F(0,t) = \frac{d}{2(\tau+e_0)} \quad , \quad F(d,t) = \frac{-d}{2(\tau+e_0)}$$

と表わせる事であると言う事ができる。

才一，才二の条件の内$F(0,t)$ は次のように書き換えられる

$$\frac{I}{\varepsilon\mu^*} > \frac{dF(0,\tau)}{d\tau} \quad , \quad \frac{I}{\varepsilon\mu^*}\tau < \frac{d}{d\tau}\tau F(0,\tau)$$

上の不等式をτ_1 からτ_2まで積分すると

$$\frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_1}^{T_2} I(T)\,dT > F(0,\tau_2) - F(0,\tau_1)$$

$$\tau_2 F(0,\tau_2) - \tau_1 F(0,\tau_1) > \frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_1}^{T_2} I(T)\,\tau(T)\,dT$$

これが，任意の $T_2 > T_1$ について成立する事は、前の不等式と同等である。

$F(d,\tau)$ についても同様に

$$\frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_1}^{T_2} I(T)\,dT < F(d,\tau_2) - F(d,\tau_1)$$

$$\tau_2 F(d,\tau_2) - \tau_1 F(d,\tau_1) < \frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_1}^{T_2} I(T)\,\tau(T)\,dT$$

$F(0,\tau)$，$F(d,\tau)$ の測定方法について，ここでは詳述しないが，これら2つの量が反対符号を持つことから考えても，差よりも和の方が誤差に敏感である。すなわち．Q_{total} は実験的に安定な量であり，$(1-2\bar{x}/d)$ は不安定である。従って，$F(0,\tau)$, $F(d,\tau)$ 等が正確に測定され、それらにより μ^* が計算されるならば前の条件不等式はデータの間の矛盾がない事を表わすという消極的な意味しか持たないが、実際には．上に述べたような不安定があるために．これによる不正確さを取り除くという事に用いられるため．いくらか積極的な目的をも持つようになる。このためには．不等式から $\bar{x}$ を消去し，μ^* に関する条件に書く事がよりだろう。というのは．μ^* はある程度，その形を限定する事ができるからである。

$$F(d,\tau) = -Q_{total}\frac{\bar{x}}{d\varepsilon} \quad , \quad F(0,\tau) = Q_{total}\left(\frac{1}{\varepsilon} - \frac{\bar{x}}{d\varepsilon}\right)$$

$$\frac{\bar{x}}{d} = -\frac{d\varepsilon I}{\mu^* Q_{total}^2} + \frac{1}{2}$$

上式を才1の不等式で $\tau_1=0$ としたものに代入しよう，簡単のため $Q=Q_{total}$ と書く。

$$-\frac{Q}{2\varepsilon} + \frac{dI}{\mu^* Q} - F(d,0) > \frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_0}^{T} I\,dT > \frac{Q}{2\varepsilon} + \frac{dI}{\mu^* Q} - F(0,0)$$

又 $\tau_2=\infty$ とすると、

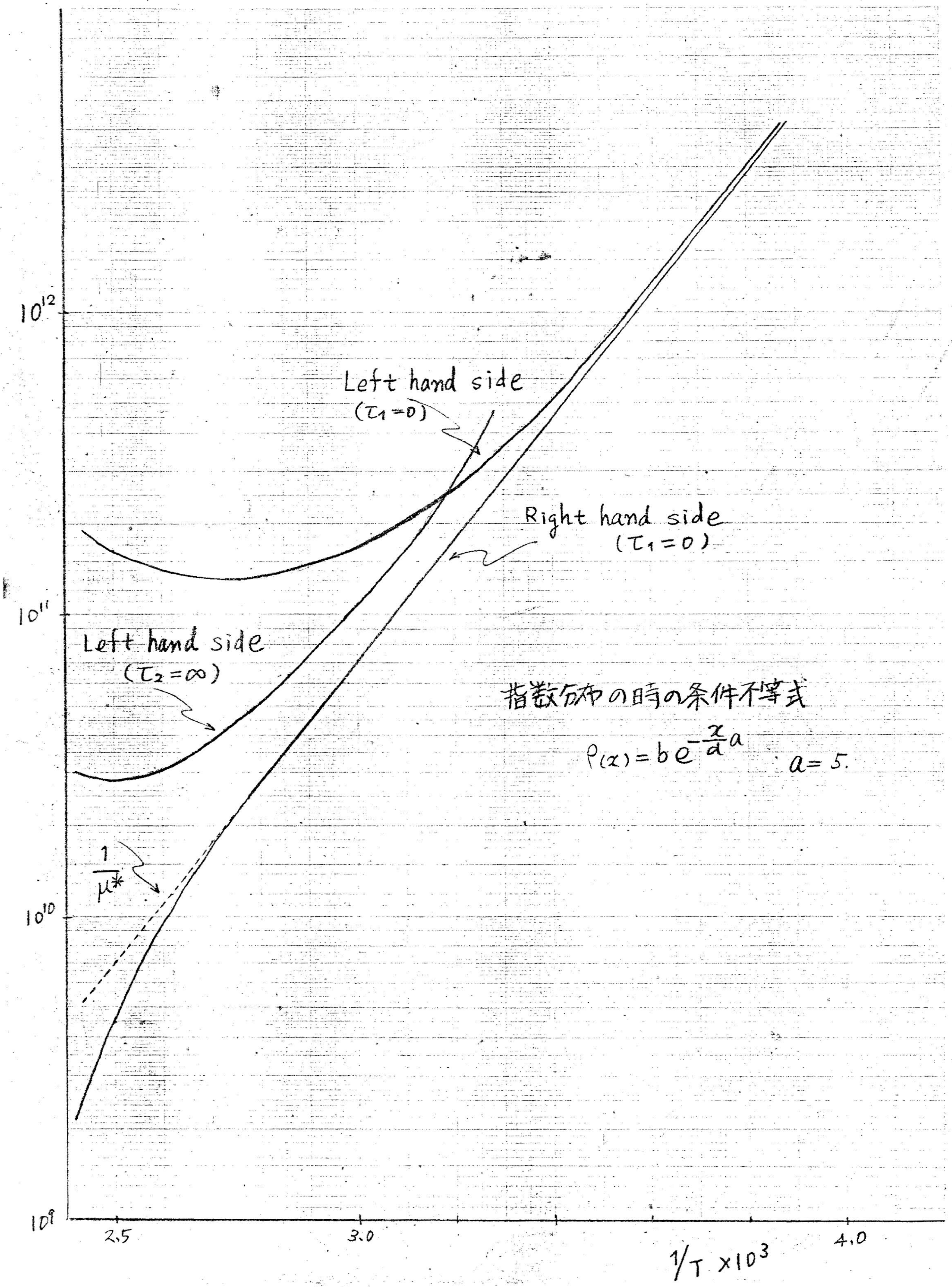
$$\frac{Q}{2\varepsilon} + \frac{dI}{\mu^* Q} > -\frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T}^{\infty} I\,dT > -\frac{Q}{2\varepsilon} + \frac{dI}{\mu^* Q}$$

最初の不等式を μ^* について書き換える。ただし $I>0$ と仮定すると

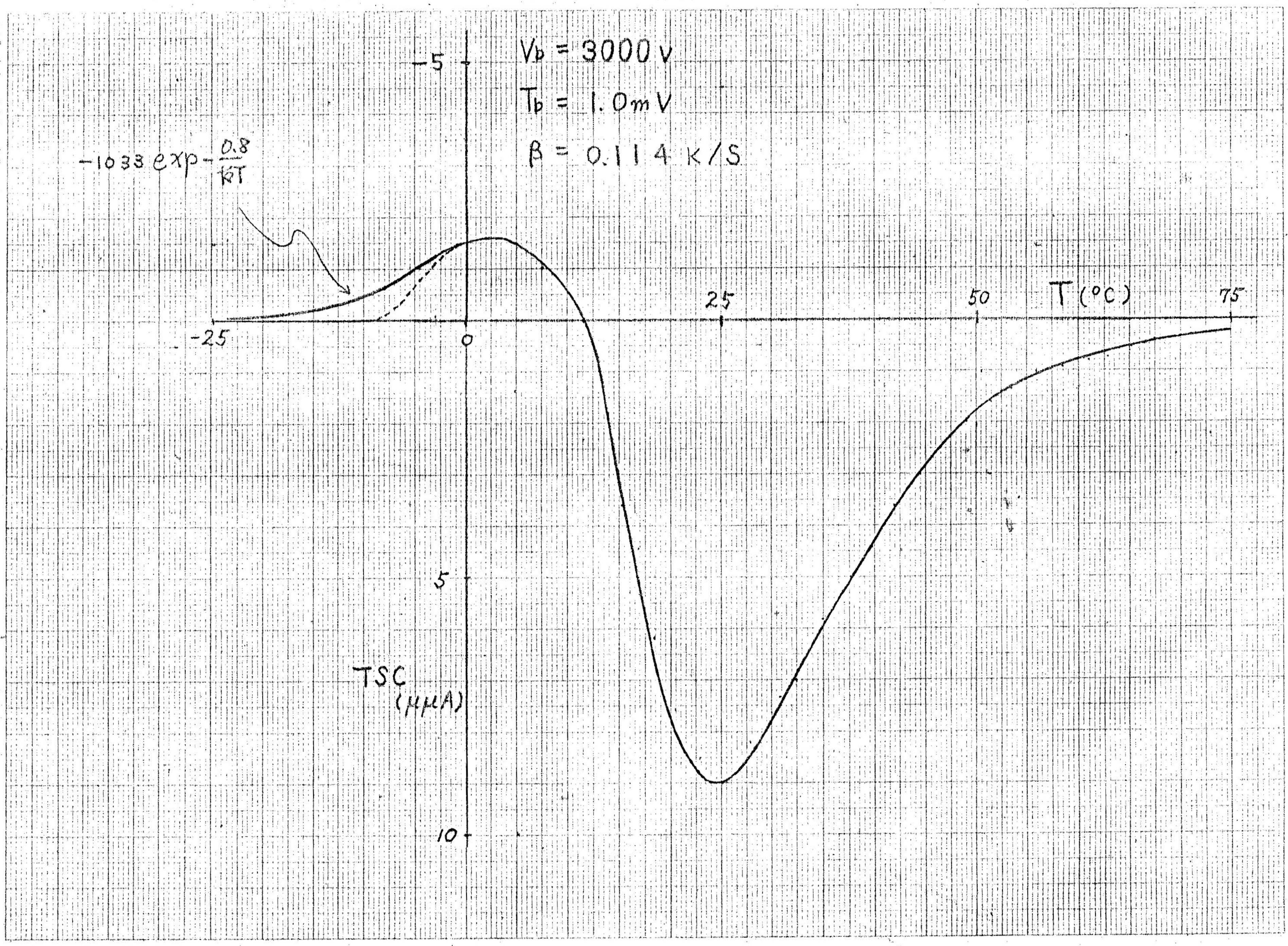
$$\frac{Q}{dI}\left(F(0,0) - \frac{Q}{2\varepsilon} + \frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_0}^{T} I\,dT\right) > \frac{1}{\mu^*} > \frac{Q}{dI}\left(F(d,0) + \frac{Q}{2\varepsilon} + \frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_0}^{T} I\,dT\right)$$

この不等式の両辺を、指数分布の場合に示す。さらに才2の不等式は同様に

$$\frac{Q}{dI}\left(\frac{Q}{2\varepsilon} - \frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_0}^{\infty} I\,dT\right) > \frac{1}{\mu^*} > \frac{Q}{dI}\left(-\frac{Q}{2\varepsilon} - \frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_0}^{\infty} I\,dT\right)$$



10^{12}
10^{11}
10^{10}
10^{9}
2.5
3.0
4.0
$1/T \times 10^3$
Left hand side
$(\tau_1=0)$
Right hand side
$(\tau_1=0)$
Left hand side
$(\tau_2=\infty)$
指数分布の時の条件不等式
$\rho(x)=be^{-\frac{x}{a}a}$
$a=5.$
$\frac{1}{\mu^*}$



$V_b = 3000\,V$
$T_b = 1.0\,mV$
$\beta = 0.114\,K/S$
$-1033\,exp-\frac{0.8}{kT}$
T (°C)
TSC (μμA)
-25
0
25
50
75
-5
5
10

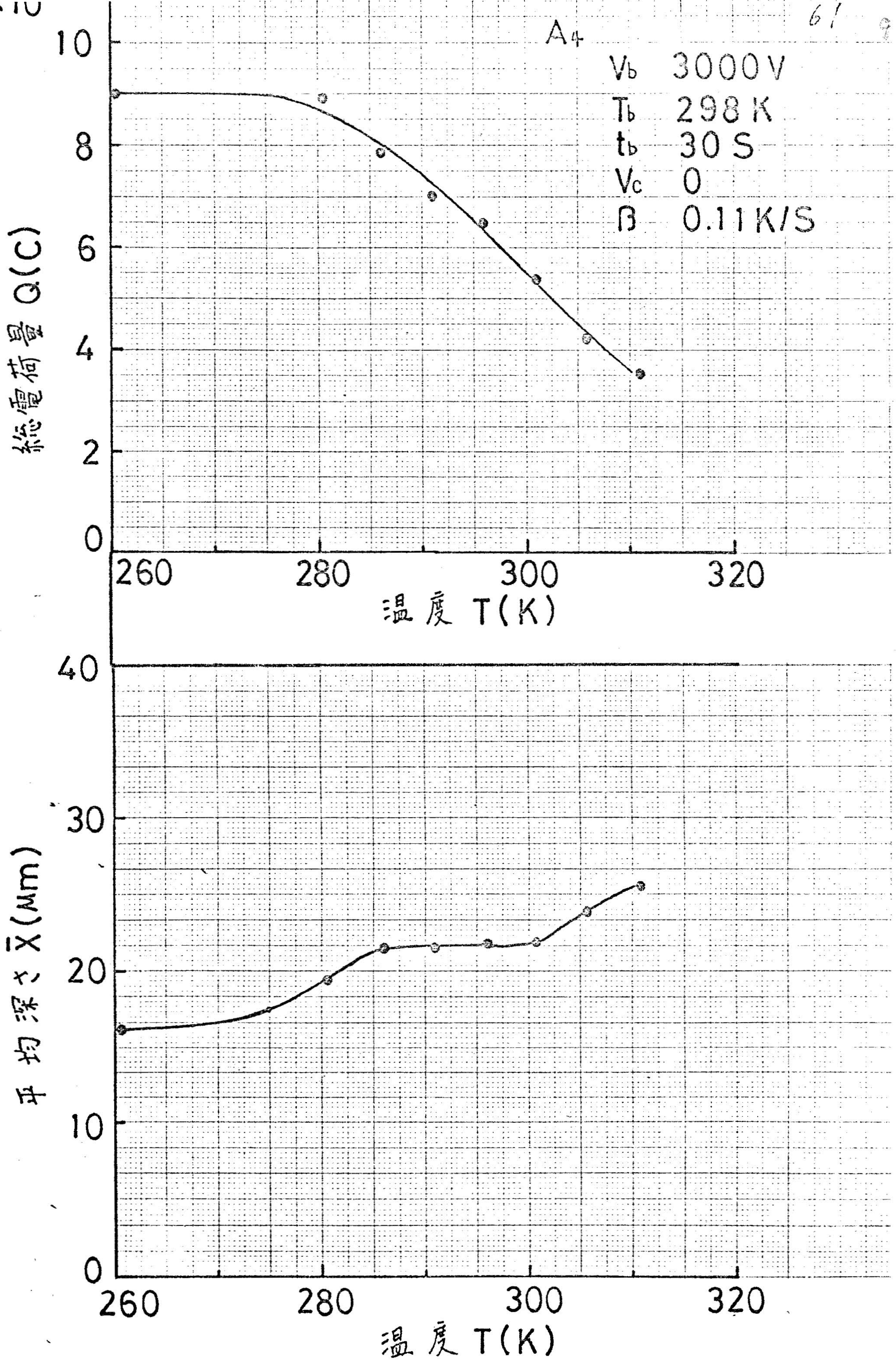


図4-40 A試料における電荷量と平均深さの温度変化（コレクティング電圧が零の場合）

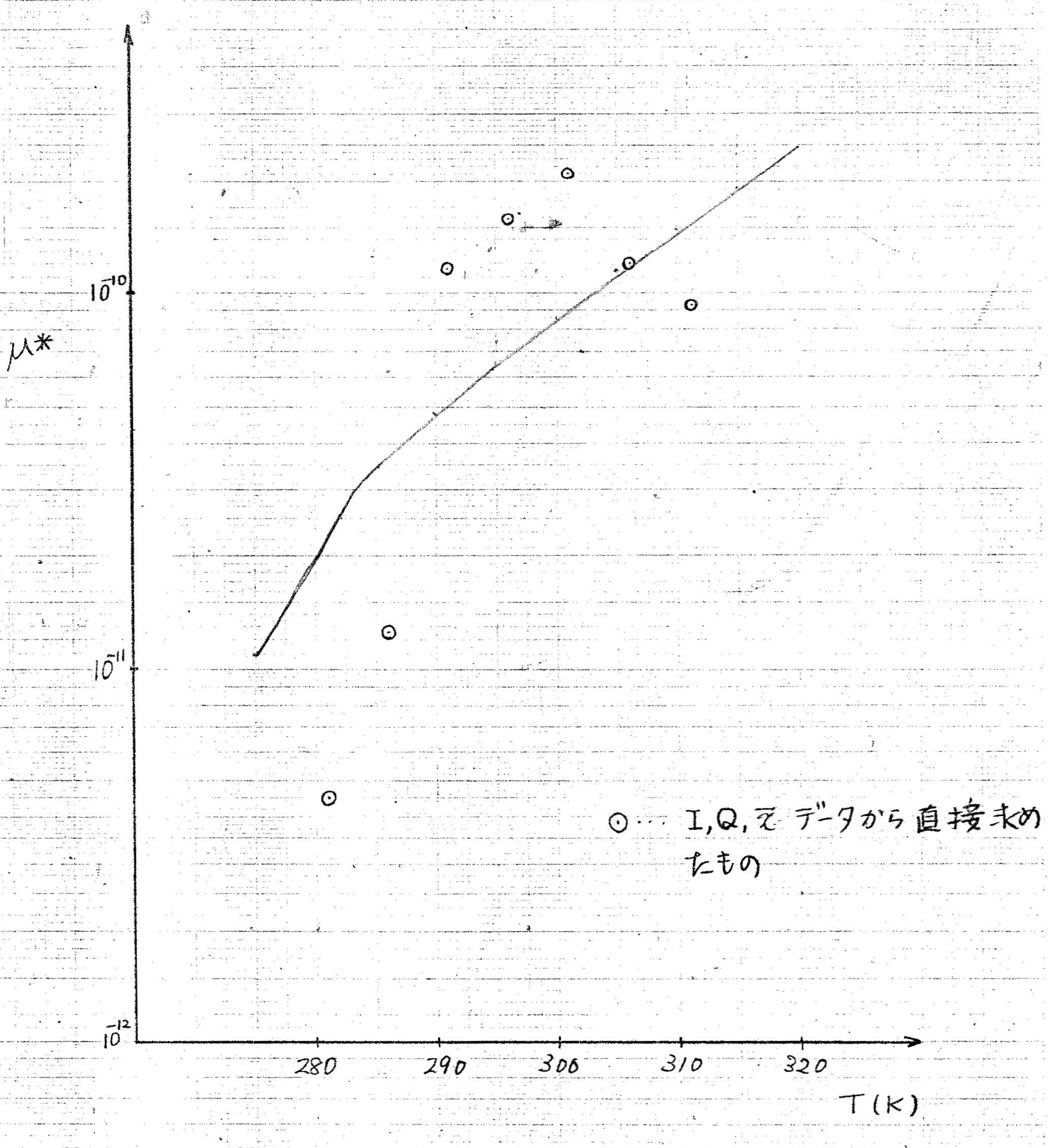
$1/\mu^*$が不等式の右辺と左辺の間の領域に入る事は必要条件であるが、十分条件ではない。しかし、例から明らかなように、μ^*について特別な形（今は$\mu^* = 10^{-16}\exp(Ea/kT_0 - Ea/kT)$であり、$1/T$ vs. $\ln\mu^*$は直線となる）を持たせるならば、μ^*の取り得る範囲を相等限定する事ができる。さらに何らかの方法、たとえばInitial rise法などによりEaが知られているならば、μ^*の可能な値についてより詳しく知る事ができる。そのようにして得られたμ^*が実際に条件を満足するかどうかは、直接代入するなどにより確めなくてはならない。又、上に求めたμ^*とI，Qから計算した$\bar{x}$が実験の精度内で一致しなくてはならない。以上の方法により、データ間の理論と矛盾する部分が、実験の精度内で取り除かれれば、そのデータを用いて分布を具体的に計算する事ができる。

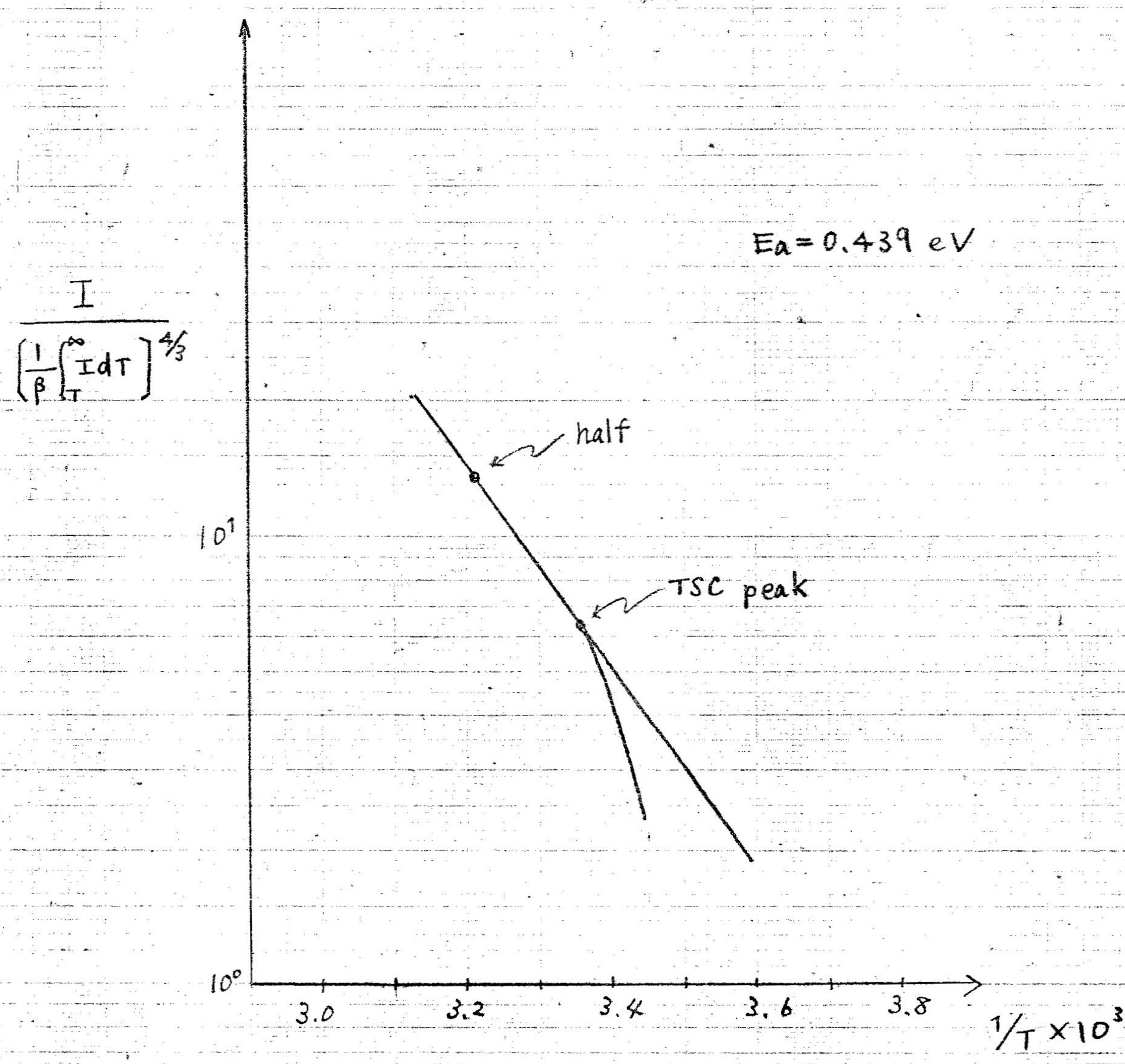
- 実験結果への応用.

試料は低密度ポリエチレンで密度0.922 g/cm³，厚さ40μmである。アルミニウムの電極を蒸着し、その面積は2 cm²である。試料に直流3000 Vを温度298 Kで30秒間印加した時の、TSC，Q，$\bar{x}$を第　図に示す。ここで昇温速度は0.114 K/secである。

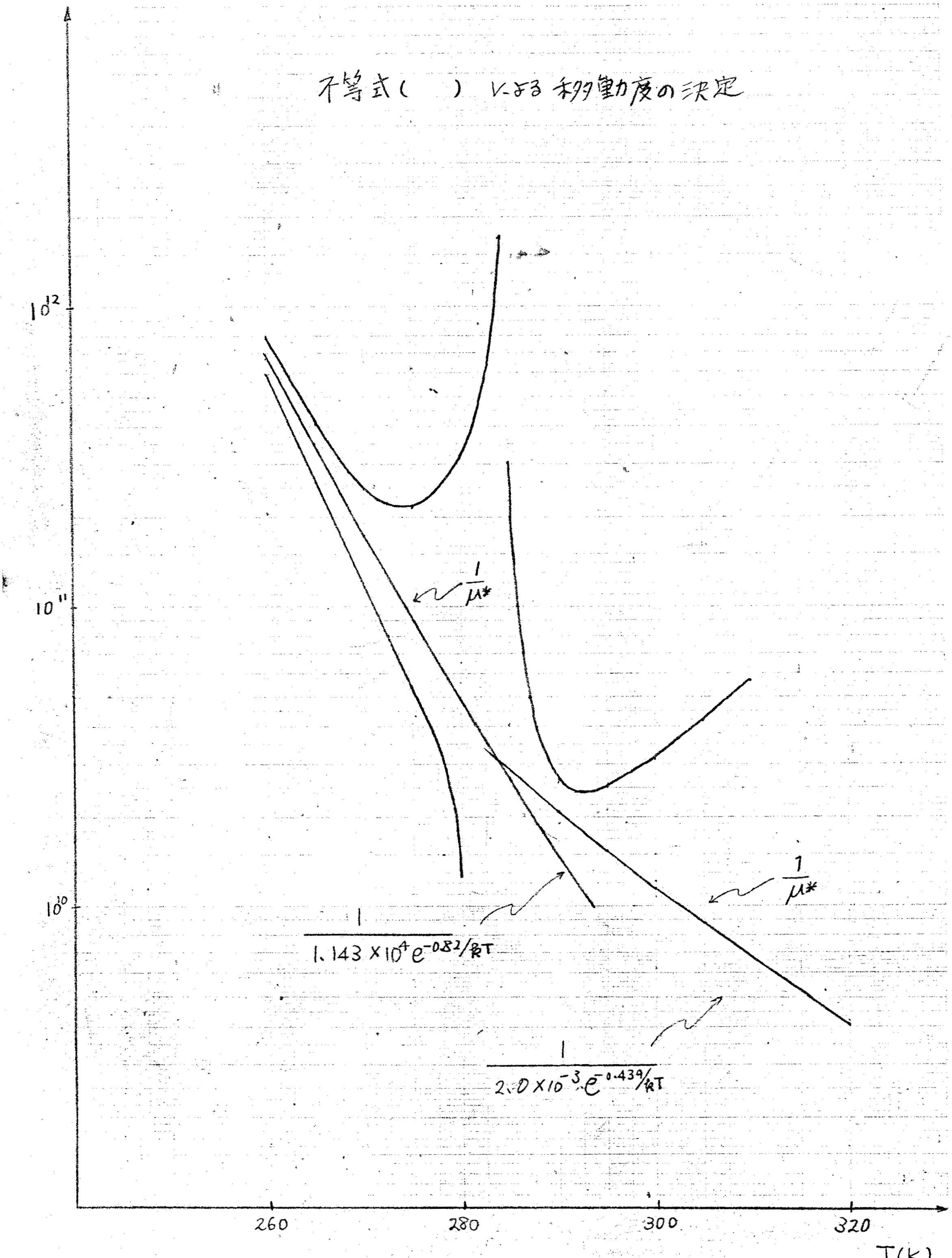
TSCでは、印加電圧の逆方向の電流を正に取っている、図から分かるようにTSCは高温側で印加電圧と同方向に流れる。すなわち、充電々流と同方向に流れる訳だが，これは双極子の脱分極によるTSCなどでは見られない特異な現象である。このような現象は、多数[redacted]報告され、いくらかの考察も行なわれてきているが，この事は次章で詳論することとし、ここでは触れないことにする。

前述したように、I，Q，$\bar{x}$からμ^*を計算できるのでその結果を第　図に示す。これから、バラつきが非常に大きい事が分かる。このため、μ^*を求めるため、前述の方法を用いることになる。活性化エネルギーを求めるため、Initial rise法又は、Tail法を適用する必要があるが，TSCの初期部分が不明確であるから、Initial rise法は適用できない。特にTSCの反転が起こる場


10^{-10}
μ^*
10^{-11}
10^{-12}
280
290
300
310
320
T(K)
⊙… I, Q, τ̄ データから直接求めたもの



Tail 法により活性化エネルギーを求める


不等式(　　)による移動度の決定
10^{12}
10^{11}
10^{10}
$\frac{1}{\mu^*}$
$\frac{1}{\mu^*}$
$\frac{1}{1.143\times10^{4}e^{-0.82/kT}}$
$\frac{1}{2.0\times10^{-3}e^{-0.439/kT}}$
260
280
300
320
T(K)

合などでは、初期の立ち上がりが非常に短いのでInitial rise 法の適用は困難である。Tail法の適用結果を才　図に示す。一般にTSCの高温側で電流の小さい部分は、かなり不明確になるので、電流の積分を$T \to \infty$まで行なうのは不可能である。従って、Tail法を適用するためには、何らかの方法によって、ある限界温度T_c以上の電流の積分を予想しなくてはならない。ここでは、$1/T$対$\ln \mu^*$がなるべく直線となるように最少自乗法により決定した。それによれば、TSCの後半部分における活性化エネルギーは$0.439eV$である。また、TSCの初期部分の温度領域においては、前述の不等式からある程度の制限を与える事ができる。不等式を才　図に示す。さらに(　　)式

$$\mu_0^* = \frac{d\mathcal{E}}{3AQ(T_c)}\left[\frac{1}{\beta}\int_{T_c}^{\infty} I\,dT\right]^{1/3}$$

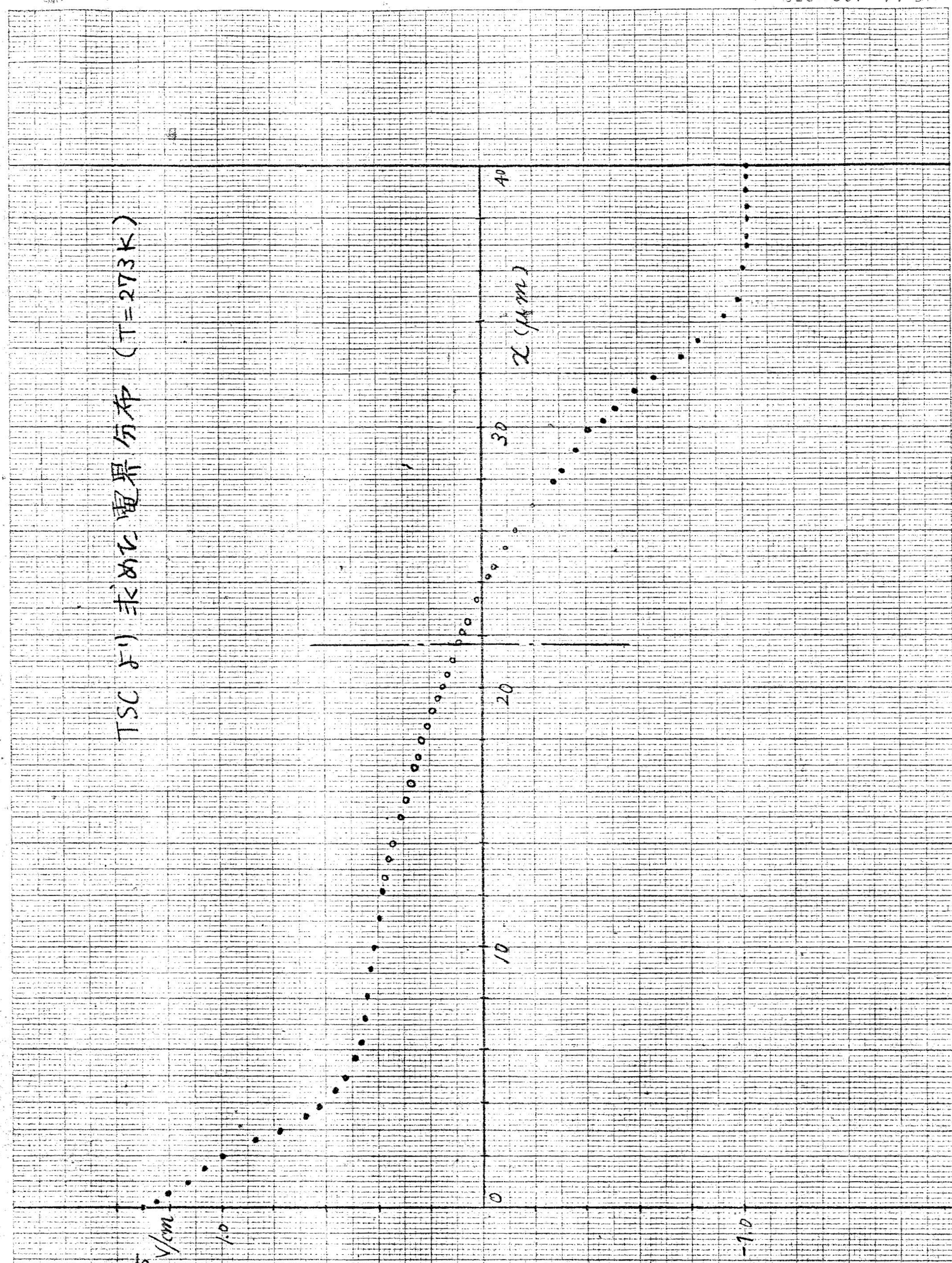
を用いてμ_0^*を計算できる。この計算されたμ_0^*が一定値を取る事が、Tale法の適用できる条件ともみることができる。この値を$T=301K$, $306K$, $311K$の各温度で計算すれば

$$\begin{aligned}\mu_0^* &= 2.08\times10^{-3}\ cm^2/vsec \quad & T=311K\\ &= 2.03\times10^{-3}\ cm^2/vsec \quad & T=306K\\ &= 1.79\times10^{-3}\ cm^2/vsec \quad & T=301K\end{aligned}$$

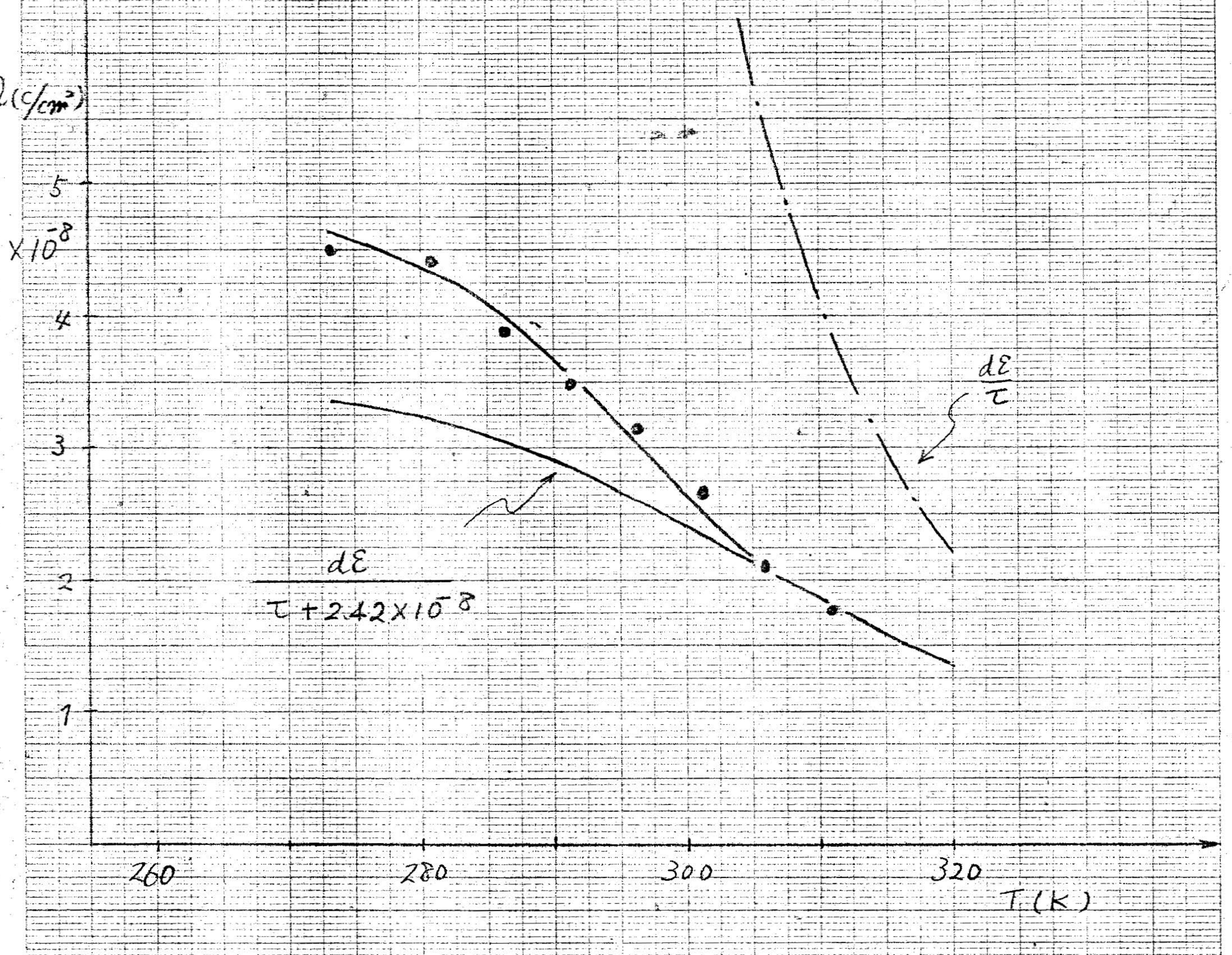
ただし、$A=5.72\times10^{-9}$　　とした。これから分かるように$T=311K$, $306K$ではμ_0^*の値はほぼ一致している。従って、$306K$以上の温度ではTale法が成立すると考えて良いだろう。ここでは、$\mu_0^* = 2.0\times10^{-3}cm^2/vsec$と取ることにする。才　図に示したように、低温では$\mu^*=1.143\times10^4\exp(-0.82/kT)$と取り合わせて

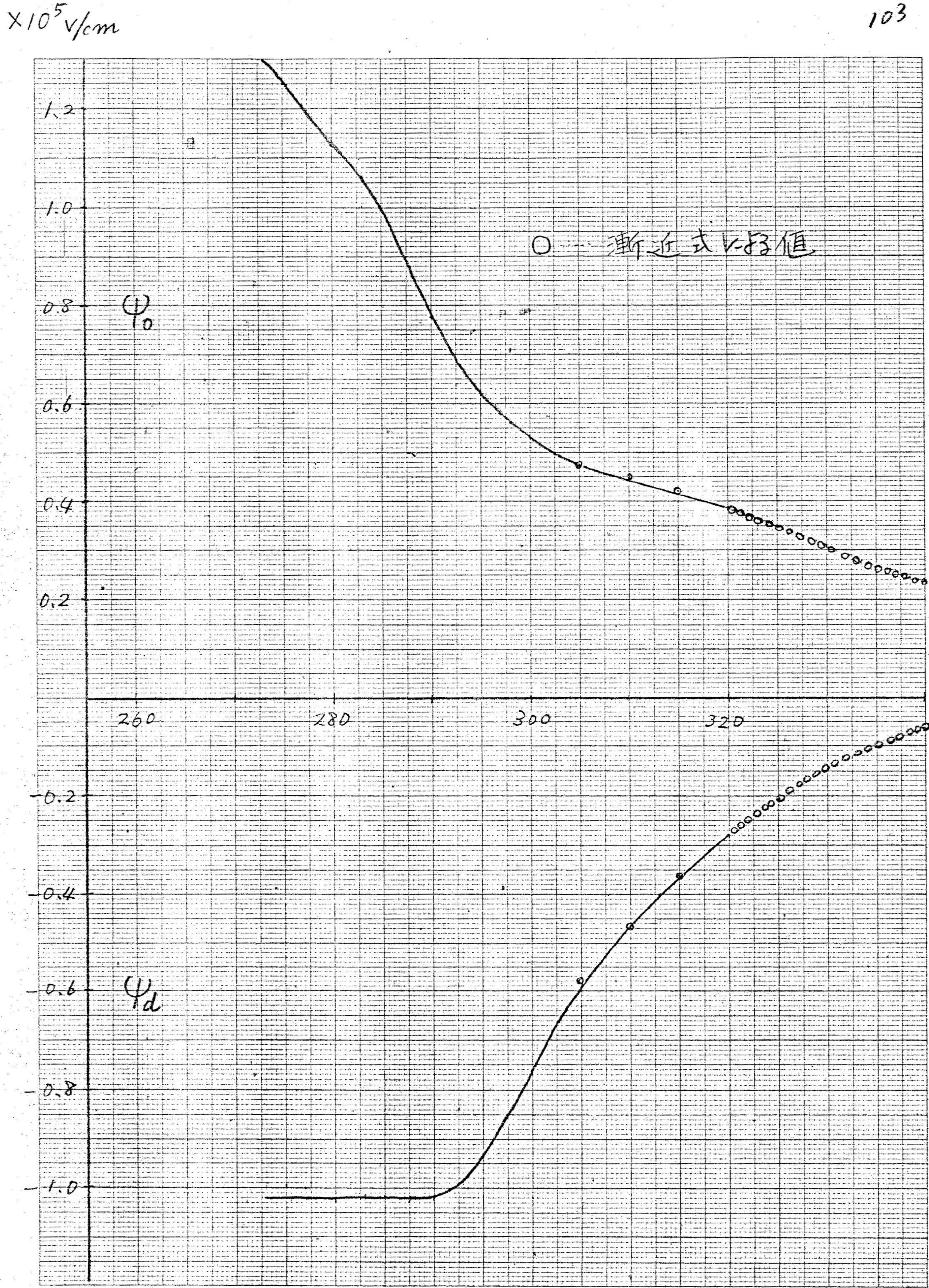
$$\mu^* = \begin{cases} 1.143\times10^4\exp(-0.82/kT) & T<283K\\ 2.0\times10^{-3}\exp(-0.439/kT) & T>283K\end{cases}$$

とする。


TSCより求めた電界分布 (T=273K)
x (μm)
40
30
20
10
0
X10^5 V/cm
1.0
-1.0

全電荷量Qの変化




×10⁵ v/cm
1.2
1.0
0.8
0.6
0.4
0.2
-0.2
-0.4
-0.6
-0.8
-1.0
260
280
300
320
Ψ₀
Ψd
○……漸近式による値
JIS A4 180×250mm

$$\Psi_0 = \frac{Q}{2\varepsilon} + \frac{dI}{\mu^* Q} - \frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_0}^{T} I\, dT$$

$$\Psi_d = -\frac{Q}{2\varepsilon} + \frac{dI}{\mu^* Q} - \frac{1}{\varepsilon\beta}\int_{T_0}^{T} I\, dT$$

が成り立つ事は容易に分かる。これを用いてΨ_0, Ψ_dを求めれば才　図のようになる。さらに十分高温になれば級数展開を用いて

$$\Psi_0 \simeq -g_\infty + \frac{d}{2}\frac{1}{(\tau+e_0)} - \frac{e_1 d^2}{9}\frac{1}{(\tau+e_0)^3}$$

$$\Psi_d \simeq -g_\infty - \frac{d}{2}\frac{1}{(\tau+e_0)} - \frac{e_1 d^2}{9}\frac{1}{(\tau+e_0)^3}$$

$$e_0 = 2.42\times 10^{-8}\ \mathrm{cm^2/V}, \quad e_1 d^2 = 7.140\times 10^{-18}\ \mathrm{cm^5/V^2}$$

$$g_\infty = -9000\ \mathrm{V/cm}$$

とできる。これも同時に才　図に○印により示した。なめらかに、接続されている事が分かる。

以上の値を用いれば電界分布を計算する事ができる。結果を才　図に示す。$x=12.2\,\mu m$ から $x=28\,\mu m$ までは $T=320\,K$より高温のデータが必要とされる部分である。しかし、$320\,K$以上の高温では、漸近形が使えると考えられるので、それを利用して求める事ができる。一般に上に現われたような、限界の温度をT_cと書こう。Ψ_dを例にとれば

$$\Psi_d = F_0\left(d + \Psi_d\tau + \int_0^\tau g\, d\tau\right)$$

$$= F_0\left(d + (\Psi_d + g_\infty)\tau + \int_0^\tau g - g_\infty\, d\tau\right)$$

$$\int_0^\tau g - g_\infty\, d\tau \simeq \int_0^{\tau_c} g - g_\infty\, d\tau + \int_{\tau_c}^{\tau}\frac{e_1 d^2}{36}\frac{1}{(\tau+e_0)^3}\, d\tau$$

$$= \int_0^{\tau_c} g - g_\infty\, d\tau + \frac{e_1 d^2}{2^3 3^2}\left[\frac{1}{(\tau_c+e_0)^2} - \frac{1}{(\tau+e_0)^2}\right]$$

従って

$$-g_\infty - \frac{d}{2}\frac{1}{(\tau+e_0)} - \frac{e_1 d^2}{9}\frac{1}{(\tau+e_0)^3}$$

$$= F_0\Big(d - \frac{d}{2}\frac{\tau}{\tau+e_0} - \frac{e_1 d^2}{2^3 3^2}\frac{9\tau+e_0}{(\tau+e_0)^3} + \int_0^{\tau_c} g-g_\infty \, d\tau$$

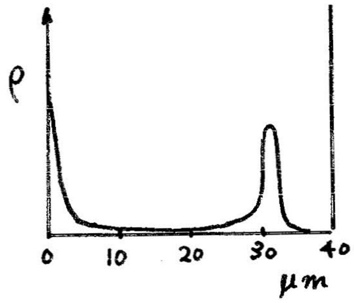
$$+ \frac{e_1 d^2}{2^3 3^2}\frac{1}{(\tau_c+e_0)^2}\Big)$$

同様にしてψ_0について方程式を書き下す事ができる。Tc = 320K とすれば

$$\int_0^{\tau_c} g \, d\tau = -1.88\times10^{-4}\ \mathrm{cm}$$

$$\tau_c = 3.66\times10^{-8}\ \mathrm{cm^2/V}$$

これにより電界分布を完全にする事ができる。漸近式により求めた部分は、図中の○で示された部分である。



電界分布から容易に分かるように、電荷の分布は、右図のようになる。$x=30\mu m$ 近くに電荷のピークが見られるが、これはTSCの反転に伴なうものであり、本論文の仮定によれば、必然的に導かれるものである。しかし、通常の空間電荷制限電流の理論[1]によれば、注入電荷の分布が右図のような極大を持つ事はあり得ない。絶縁体における空間電荷の分布は、不明な点が多く、直接観測された例はあまりない。最近 R.E. Collins による熱パルス法[2]による電荷分布測定の提案などがなされ、実験も行なわれているが、測定法としていまだ確立していない。このような現状から考えて、上図の分布の生成機構やその妥当性について詳細に議論する事は適当でない。検討は今後の課題としよう。

電界分布の決定法として、shallow and fast trap のみを考慮に入れて来たが、その他のトラップや、界面の影響については、詳細な議論が必要であると考えられる。

1) M.A. Lampert and P. Mark "Current Injection in Solids" A.P. 1970
2) R.E. Collins Rev. Sci. Instrum. 48. 1. 83 (1977)

$$\ln I = \mathrm{const} - \frac{E_a}{kT} + \ln\frac{dg}{d\tau} \qquad 7\text{-i-}11$$

であるから、$\ln I$ v.s. $1/T$ が傾き E_a/k の直線となるためには、式(7-i-6)に対応して

$$\frac{E_a}{k} \gg \left|\frac{d}{dT^{-1}}\ln\frac{dg}{d\tau}\right| \qquad 7\text{-i-}12$$

$$= \left|\frac{T^2}{\beta}\frac{d^2g}{d\tau^2}\Big/\frac{dg}{d\tau}\mu^*\right|$$

ただし、　$\mu^* = \beta d\tau/dT$　を用いた。ピーク温度では式(7-i-12)の両辺は等しいので、不等式はもちろん成り立たない。式(4-i-19)と、式(7-i-7)と同様に　$\tau \simeq kT^2\mu^*/E_a\beta$　を用いれば、式(7-i-12)は次のように書くことができる。

$$1 \gg \tau\left|\frac{2g_2}{g_1}\right| \qquad 7\text{-i-}13$$

ピークに対応する τ を τ_m とすると、g_1 と g_2 が異符号のときは

$$\tau_m \simeq \left|\left(\frac{2g_2}{g_1}\right)^{-1}\right| \qquad 7\text{-i-}14$$

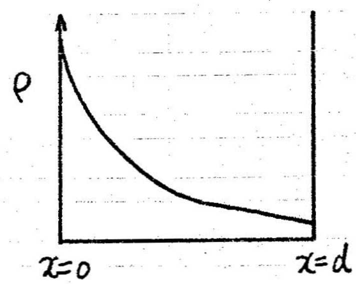
$$\frac{T_m^2}{T^2} \quad \frac{\tau}{\dfrac{g_1}{8g_2}}$$

$$\Delta\frac{T_m^2}{T^2}\gamma$$

反転現象

電荷分布を算出した所でも述べたように、高温で電圧印加する事により、絶縁体中に過剰電荷を発生するか、コロナ放電などにより過剰電荷を捕獲し、その後降温して熱刺激電流を測定すると、通常期待される印加電圧と逆方向の電流の他に、同方向の電流が観測される。このような現象は多数報告されており、さらに、等温の放電々流の測定の場合にも観測されている。このような特異な反転現象に対し、いくつかの機構が提案されている，それらについて概観することにしよう。

1) 通常注入電荷は右図のように $x=0$ を注入電極とした時，注入電極から離れるに従って減少すると考えられている。Van Turnhout , T. Mizutani , Samoc 等によれば、注入電極が、部分的に blocking であれば、通常の放電々流と逆方向の特異な電流が流れる。これは定量的に次のように表現する事ができる。電荷の拡散係数を D，拡散による電流の寄与を I_D とすれば

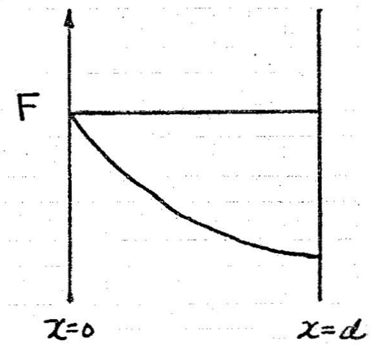


$$I_D = -\frac{D}{d}(\rho(0) - \rho(d))$$

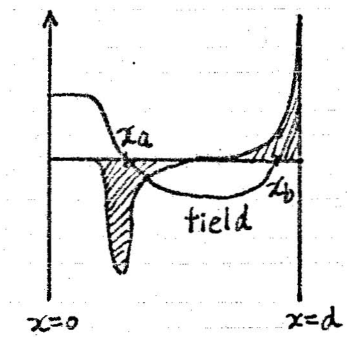
ここで電荷は電子であるとし、ρ は正に取っている。従って、拡散効果は上述のような分布では、特異な電流に寄与する。

2) G. Sawa 等によれば、注入電荷は上述のような分布をとるが、電荷はトラップされる。いくらかの電荷は深くトラップされ、他の電荷は浅くトラップされる。放電々流には主に浅くトラップされた電荷の熱励起によって生ずると考えられる。浅いトラップに捕獲された電子数が $x=d$ 近くよりも $x=0$ 近く方が多ければ、この時の電流は通常観測される方向となる。逆に、$x=d$ 近くの電子数が多いとすれば、このときの電流は特異な方向を持つことになる。電圧印加して、電子注入する

場合、試料内の電界分布は、右図のようになるであろう。このように $x=d$ では $x=0$ よりも高電界となっているため、field-assisted trapping が仮定されれば、高電界領域では浅いトラップの実効的障壁は低くなり、捕獲断面積は増大しトラップに捕えられる電子の割合は増大する。従って、前述のようなトラップ電子分布が可能となる。



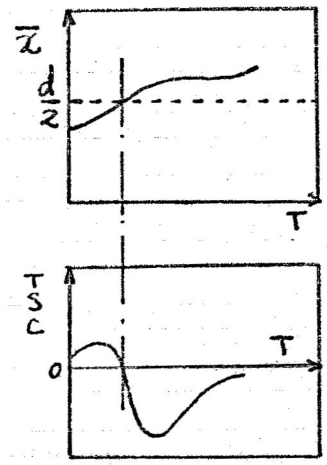
3) B. Grossは、Borosilicate Glassに電子線を照射し、そのTSCを測定した。TSCは反転現象を示したが、試料ガラスの厚さが、1.75cmと厚かったため、ガラスをしだいに削る事により電荷分布を直接測定し右図のような結果を得た。ここで、斜線の部分は空間電荷を示し、実線は電界を示している。電荷は上向きを正に取っている。$x=0$ の面が照射面であり負電荷は照射された電子を示している。正電荷は、電子の注入に伴って $x=d$ から注入された正電荷を示している。



$x=0$ から $x=x_a$ までの負電荷、及び $x=x_b$ から $x=d$ までの正電荷は、各々最近電極へ進行し、通常の放電々流を与える。一方 $x=x_a$ と $x=x_b$ の中間の正負電荷は、中心に向かって進み反転電流を与える。

上に述べた3つの機構の内(1)(2)では単一電荷を考えている、またその空間的な分布はいずれも単調な関数であった。前章で調べたように、実際の反転電流を含むTSCから分布を求めれば、単調な関数にはならなかった。一般に、注入空間電荷の分布が距離に関し単調であることの根拠となっているのは、空間電荷制限電流の理論による考察であり、それから得られる電圧電流特性は、実験的

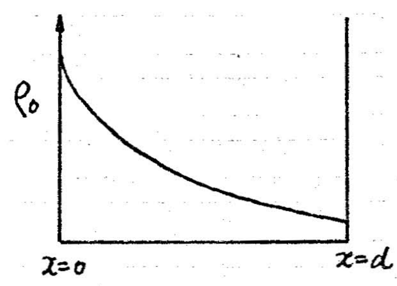
にかなり調べられているとはいえ、電荷分布そのものに関する実験的検証は、ほとんど無い事は注意しなくてはならない。前章で示した実験結果に関連して次の事は重要である。すなわち、第1点として右図のように$\bar{x}$が$d/2$を越える事，さらに、$\bar{x}=d/2$となる温度と，TSCの反転の起こる温度が、ほとんど一致する事である。単なる単調分布では、$\bar{x}$が$d/2$を越える事がない事は明らかである。$\bar{x}=d/2$の温度とTSCの反転温度が一致することは、前章にも示したように、



$$I=\frac{\mu^*}{2d\varepsilon}Q^2\left(1-2\frac{\bar{x}}{d}\right)$$

なる関係が成立している事を示唆しているように思える。ここでは、反転現象を常に上のような$\bar{x}$の性質と共に考えれば、(1)(2)のような機構は$\bar{x}$の振舞いを説明することはできない。また(3)のような両極電荷の注入を単一電荷の注入から区別する事は容易でないが、前章に示した場合には、いくらかの実験的証拠により単一電荷の注入と考えるのが妥当である事が示されている。以下では単一電荷の注入に議論を限る事にする。

注入電荷の分布が、右図のように、単調であるときに、電流の反転が起こらない、すなわち、平均注入距離$\bar{x}$が常に$d/2$より小さい事は直観的には、ほとんど明らかであるが、下のように解析的に示すことができる。



$$\Psi=F_0\left(x+\Psi\tau+\int_0^\tau g\,d\tau\right)$$

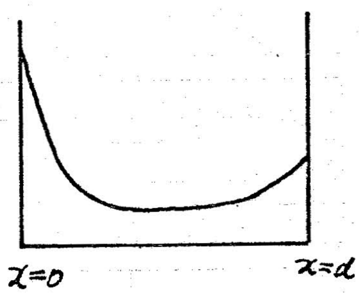
$$\frac{\partial\Psi}{\partial x}=-\frac{\rho}{\varepsilon}$$

であるから、第1の関係式を両辺xにつき微分して整理すれば、初期の電荷分布を$\rho_0(x)$として

$$\rho(x,\tau) = \frac{\rho_0(x + \psi\tau + \int_0^\tau g\,d\tau)}{1 + \frac{1}{\varepsilon}\tau\,\rho_0(x + \psi\tau + \int_0^\tau g\,d\tau)}$$

これから分かるように，ρ_0が単調減少ならばρも減少関数である。従って，初期電荷分布が単調ならば，反転は起こらない。

反転が起こるためには，右図のような，単調でない電荷分布を仮定する必要がある。しかし，このような電荷分布がどのような機構によって，形成されるかは，定常状態の空間電荷制限電流の考えからは理解されない。しかし，本論文で用いた色々な仮定は空間電荷制限電流の理論の考えと同様な根拠を持つものであるから，その点の調和をどのように取って行くかは大きな問題である。



結　言

本論文では、注入電荷の緩和過程について述べた。それらについて得られた結果、及び今後の問題点について下に列記する。

1) トラップの存在しない場合に電荷の運動を記述する方程式が、適当な変換によって shallow and fast trap 及び deep and slow trap が存在し、かつ後者は初期に空間的に一様に満たされている場合に拡張された。又、Ohmic conduction を考えても同様の変換が成立する事が示された。

2) 1)において得られたいくつかの偏微分方程式は、流れ関数Ψを導入することにより、常微分方程式に変形された。その結果、解析的ならびに数値的取り扱いが非常に容易になった。

3) TSCの高温側、低温側における振舞いを、時間変数τについて級数展開する事により調べ。低温では $I(T)=\mu^*(T)(g_1+2g_2\tau)$ となり高温では $I(T)\simeq\mu^*(T)\cdot A/(\tau+e_0)^4$: $A=\mathrm{const}$ となる事が分かった。

4) 空間電荷制限電流の際に生ずる電荷分布、矩形分布について、解析的な解を求めた。

5) 解析解の他に、指数分布と微分フェルミ分布についてTSCを数値的に計算し、電荷分布のTSCにおよぼす影響について調べた。(第6章のまとめを参照のこと)

6) TSCにより物理定数(活性化エネルギーなど)を求める方法として Initial rise 法を検討し、新たに Tail 法を提案した。ポリエチレンの電圧注入のTSCに適用し、活性化エネルギーとして 0.54eV の値を得た。

7) TSCを用いて電荷分布を決定する方法を示し、ポリエチレンの実験結果に応用した。またTSCの反転現象が、電荷分布が単調でない場合に可能である事を示した。

今後の課題として.

1) トラップの種類. kineticsに関する制限をゆるめる事.
2) トラップ電荷の空間的分布をも考慮に入れる事.
3) 本論文で導かれた常微分方程式が解析的に解ける場合をより豊富にする事.
4) 電荷の運動に関連して. 拡散の影響を取り入れる事.
5) 界面における電荷の交換についてより詳細な注意をはらう事.
6) Poole-Frenkel 効果などbulkの影響を考慮する事.
7) TSCを発生する種々な要因(双極子分極, 注入電荷, イオン分極, など) を互に区別する方法を開発する事.
8) 電荷分布の決定法, 及び得られた分布について実験的, 理論的検討を加える事.
9) 色々な時間依存性を持った電圧を印加した時の熱刺激電流について調べ, どのような情報が得られるか検討する事.
10) 両極電荷の存在する場合について調べる事.

付録

任意の初期電荷分布について，TSCを数値的に計算すること

本文で示したように、絶縁体内の電荷の運動は通常いくつかの偏微分方程式によって記述される。偏微分方程式は、微分を適当な差分に置き換える事により数値的に解く事ができる。しかし、流れ関数ψを導入する事により、問題の偏微分方程式は、連立常微分方程式の初期値問題に変換された。周知のように、連立常微分方程式はRunge－kutta－Gill法などにより容易に数値積分でき、計算の能率，安定性，又解析的な見とおしの良さなどから、偏微分方程式よりはるかに取り扱いに便利である。基本方程式を書くと、

$$\frac{dg}{d\tau}=\frac{1}{2d}(\psi_0-\psi_d)(\psi_0+\psi_d+2g)$$

$$\frac{d\psi_0}{d\tau}=-\frac{\psi_0+g}{\tau+U(\psi_0)}$$

$$\frac{d\psi_d}{d\tau}=-\frac{\psi_d+g}{\tau+U(\psi_d)}$$

$$U(\psi)=-1/F_0'(F_0^{-1}(\psi))$$

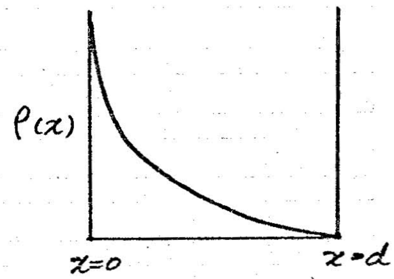
$$\psi_0(0)=F_0(0)\ ,\quad \psi_d(0)=F_0(d)\ ,\quad g(0)=0$$

となる事から、数値積分において必要な事は、$U(\psi)$の関数形を具体的に与える事である。$U(\psi)$は、初期電荷密度の大きさの逆数を、初期電界がψとなる点において求める関数であり，常に正の量である。ただし、誘電率の因子だけ異なっている。このように、$U(\psi)$は初期電荷分布が分かれば原理的には、計算できるものである。以下、いくつかの簡単な電荷分布の場合に、$U(\psi)$が実際にどのように表わされるか見て行くことにする。

1) 指数分布

$$\rho(x)=be^{-\frac{x}{d}a}$$

この電荷分布は右図のような分布を表わし，a はその片寄りの程度を表わすパラメタである。



$$Q_{total} = \int_0^d \rho(x)\,dx = \frac{db}{a}(1 - e^{-a})$$

$$\bar{x} = \frac{1}{Q_{total}} \int_0^d x\rho(x)\,dx = \frac{d}{a} - \frac{d}{e^a - 1}$$

$$F_0(x) = \frac{db}{a\varepsilon} e^{-\frac{x}{d}a} - \frac{db}{a^2\varepsilon}(1 - e^{-a})$$

$$F_0'(x) = -\frac{b}{\varepsilon} e^{-\frac{x}{d}a}$$

などとなるから

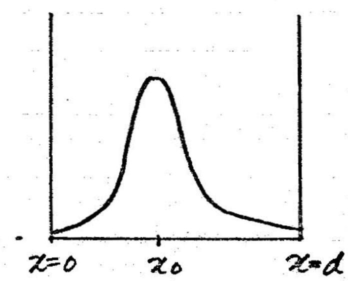
$$U(\psi) = -\frac{1}{F_0'(F_0^{-1}(\psi))} = \frac{1}{\frac{a}{d}\psi + \frac{b}{a\varepsilon}(1 - e^{-a})}$$

と表わせる。

2) 微分フェルミ分布.

$$\rho(x) = \frac{b}{\left(1 + \exp\left(a\frac{x - x_0}{d}\right)\right)\left(1 + \exp\left(a\frac{x_0 - x}{d}\right)\right)}$$

この分布は右図のように，$x = x_0$ に最大をもった分布であり，形式的にフェルミ分布関数の微分に等しいので，上に示したように呼ぶことにする。



$$\rho(x) = \frac{d}{a}\frac{d}{dx}\frac{b}{1 + \exp\left(a\frac{x_0 - x}{d}\right)}$$

$$F_0(x) = -\frac{db}{a\varepsilon}\frac{1}{1 + \exp\left(a\frac{x_0 - x}{d}\right)} + \frac{db}{a^2\varepsilon}\ln\frac{1 + \exp\left(a\frac{d - x_0}{d}\right)}{1 + \exp\left(a\frac{-x_0}{d}\right)}$$

$$Q_{total} = \frac{db}{a}\left(\frac{1}{1+\exp\left(a\frac{x_0-d}{d}\right)} - \frac{1}{1+\exp\left(a\frac{x_0}{d}\right)} \right)$$

$$\bar{x} = d\frac{\dfrac{1}{1+\exp\left(a\frac{x_0-d}{d}\right)} - \dfrac{1}{a}\ln\dfrac{1+\exp\left(a\frac{d-x_0}{d}\right)}{1+\exp\left(-a\frac{x_0}{d}\right)}}{\dfrac{1}{1+\exp\left(a\frac{x_0-d}{d}\right)} - \dfrac{1}{1+\exp\left(a\frac{x_0}{d}\right)}}$$

これから明らかに $\lim_{a\to\infty} \bar{x} = x_0$

$$U(\psi) = \frac{\varepsilon}{b}\frac{1}{\left(1-C+\frac{a\varepsilon}{db}\psi\right)\left(C-\frac{a\varepsilon}{db}\psi\right)}$$

ただし

$$C = \frac{1}{a}\ln\frac{1+\exp\left(a\frac{d-x_0}{d}\right)}{1+\exp\left(a\frac{-x_0}{d}\right)}$$

才 図は移動度の活性化エネルギーがT.S.C.におよぼす効果について示している。この計算では

$$\mu^* = 10^{-16}\, exp\left(\frac{E_a}{kT_0} - \frac{E_a}{kT}\right)$$

$$T_0 = 180\,K \quad E_a = 0.4,\ 0.5,\ 0.6\ eV$$

という形について考えた。浅いトラップが存在する場合には

$$\mu^* = \frac{\mu_{(T)}}{1 + \theta^{-1}}$$

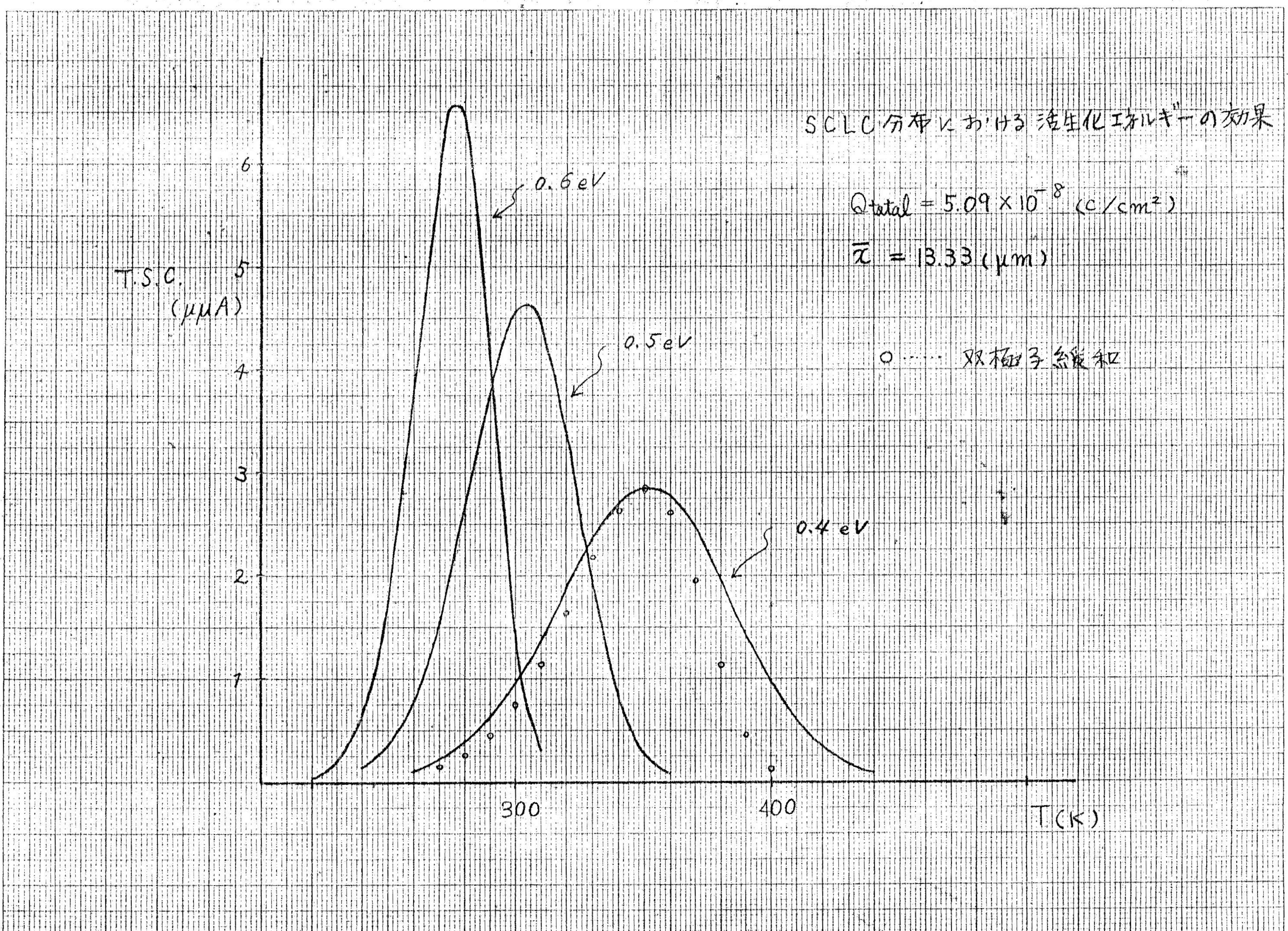
$$\mu_{(T)} = \mu_0 e^{-\frac{W}{kT}} \quad , \quad \theta^{-1} = \frac{N_s}{N_c} e^{(\Delta E)/kT}$$

ΔE はトラップレベルと伝導帯のエネルギーの差，という形になる事を前に示したが、最っとも重要な事は、TSCは

$$\tau = \frac{1}{\beta}\int_{T_0}^{T} \mu^*\, dT$$

という量にだけ関係しているから、適当な条件の下に計算しておけば，任意の μ^* についてTSCを求める事は容易である。という事である。

最初に示した形を仮定すれば、一定温度での τ は E_a の増加とともに増加する従って，E_a を増加すればTSCはしだいに低温側に移動して来る。また同時に μ^* の変化は E_a の増加に従って急激になるため、TSCスペクトルの幅はしだいに減少してくる。明らかに、TSCを積分した量は、E_a の変化によらないから、TSCのピーク電流は、増加して，ピークは鋭くなってくる。



SCLC分布における活性化エネルギーの効果
Qtotal = 5.09 × 10^-8 (c/cm²)
x̄ = 13.33 (μm)
○…… 双極子緩和
T.S.C.
(μμA)
6
5
4
3
2
1
0.6eV
0.5eV
0.4eV
300
400
T(K)

電導率σ, 深いトラップ電荷n_dの影響について、

$$\tau = \int_0^t \mu^* \exp\left[-\frac{1}{\varepsilon}\int_0^{t'}(\sigma - \mu^* e n_d)\,dt''\right] dt'$$

であり、ρ^*, F^* 等は、τを用いて書かれる。ここで誘電緩和時間τ_Rは

$$\tau_R = \frac{\varepsilon}{\sigma}$$

により定義される。従って電導率σの効果は誘電緩和時間を介して現れる。

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(-\frac{W_c}{kT}\right)$$

と書ける事が多いので、τの式のEXP中のσに関する部分は、

$$-\frac{\sigma_0}{\varepsilon}\int_0^t \exp\left(-\frac{W_c}{kT}\right) dt$$

であり、~~熱刺激~~測定では、$T = T_0 + \beta t$ と表わされ、βは昇温率と呼ばれる定数、T_0は初期温度である。一般に$W_c/kT \gg 1$ となる場合が多いので、

$$-\frac{\sigma_0}{\varepsilon}\int_0^t \exp\left(-\frac{W_c}{kT}\right) dt \simeq -\frac{kT^2}{\varepsilon\beta W_c}\sigma_0 \exp\left(-\frac{W_c}{kT}\right)$$

$$= -\frac{kT^2}{\varepsilon\beta W_c}\sigma(T)$$

これを評価するため、$T \sim 300\,K$, $\sigma \sim 10^{-16}/\Omega cm$, $\varepsilon \sim 2\times10^{-13}\,F/cm$
$W_c/kT \sim 20$, $\beta \sim 0.1\,K/s$ とすれば

$$-\frac{kT^2}{\varepsilon\beta W_c}\sigma \sim 0.075$$

従って、σからの寄与は、無視する事ができる。この事は、絶縁体では普通誘電緩和による過剰電荷の消散が他の緩和によるものに比較して遅いという事実に対応している。

次にn_dの効果について考える．

$$I(t)=\varepsilon\mu^{*}\exp\left[\frac{2e}{\varepsilon}\int_0^t\mu^{*}n_d\,dt\right]\frac{dg}{d\tau}$$

$$\tau=\int_0^t\mu^{*}\exp\left[\frac{e}{\varepsilon}\int_0^{t'}\mu^{*}n_d\,dt''\right]dt'$$

$$\frac{dn_d}{dt}=-\frac{n_d}{\tau_0}$$

であるからもつまり温度を一定にした時，$n_d(0)$の増加に伴ってτは増加する。その増加の程度を評価するため，$\tau_0\to\infty$として限界を設定する。このとき

$$n_d(t)=n_d(0)$$

であるから

$$\tau=\frac{\varepsilon}{e n_{d(0)}}\left(e^{\frac{e n_{d(0)}}{\varepsilon}\int_0^t\mu^{*}dt}-1\right)$$

となる。これから$n_{d(0)}$が小さいか，又は，tが小さい時には，

$$\tau\sim\int_0^t\mu^{*}dt$$

となり，深いトラップの影響は現れない。このような表現が許されない限界は，

$$\frac{e}{\varepsilon}\int_0^t\mu^{*}n_d\,dt\sim 1$$

ここで，T.S.C.のピークは，内部の過剰電荷の総移動距離が，試料厚の程度になった時と考えられる。また，電荷の駆動力は，自己電界のみであるからその大きさを，総電荷量Q_Tを用いて

$$E_m\sim\frac{Q_T}{\varepsilon}$$

とし，ここで総移動距離xは次のように評価できる

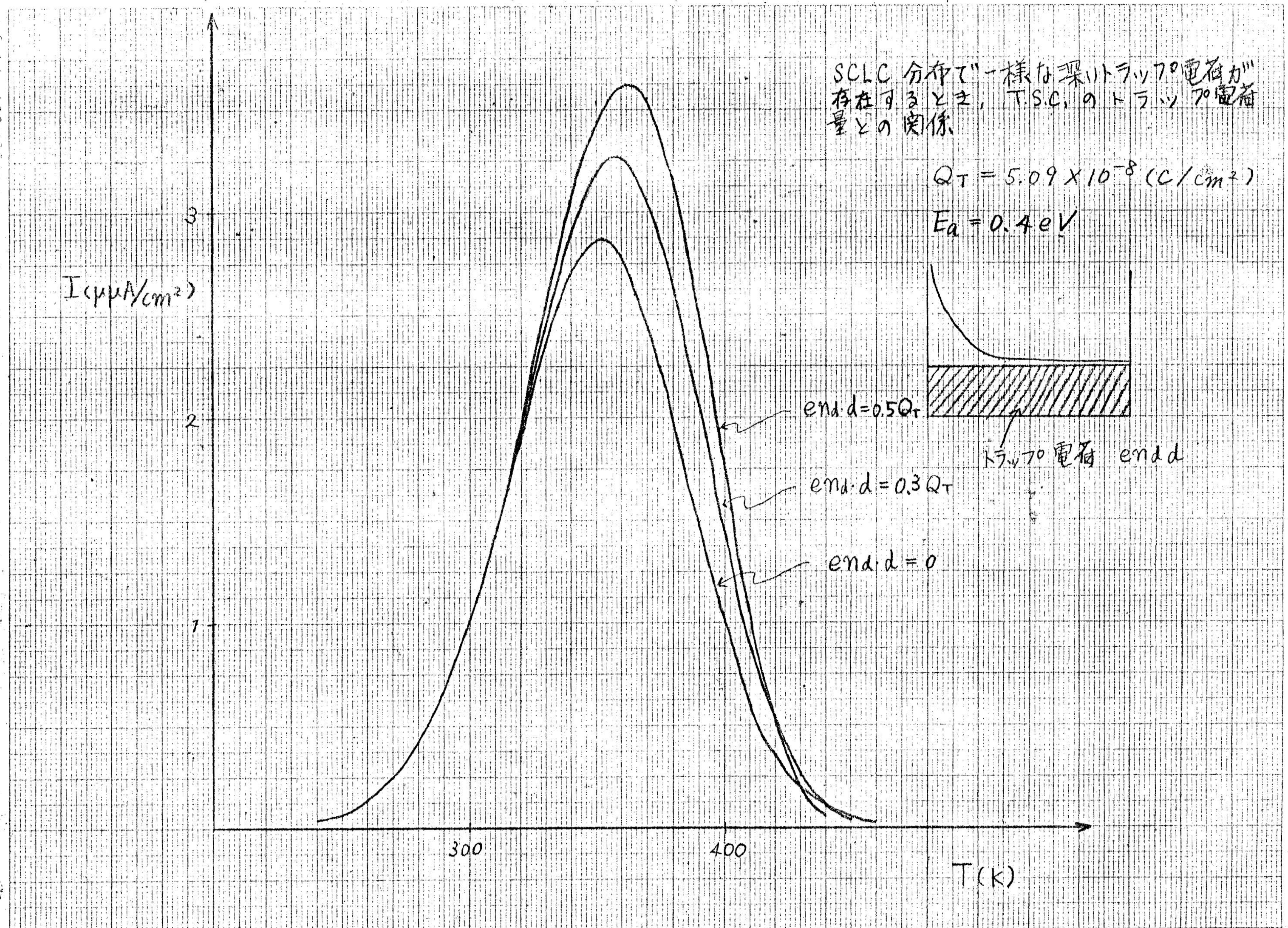
$$x \sim \frac{1}{\varepsilon}\int_0^t \mu^* Q_T \, dt$$

これが $x\sim d$ となる時間もがピーク時間と考えられる。Q_T/d は電荷密度の程度の量であるから，常に en_d より大きく，

$$\frac{e}{\varepsilon}\int_0^t \mu^* n_d \, dt < \frac{1}{\varepsilon}\int_0^t \mu^* \frac{Q_T}{d} \, dt$$

となる事から，T.S.C. のピークより以前においては、T.S.C. スペクトルは、あたかも，深いトラップが存在しないかのように振舞う事が分かる。

ピーク以後において，n_d の影響が現れるしかたは、次にT.S.C. の漸近的振舞を調べてから言及する。


SCLC 分布で一様な深いトラップ電荷が存在するとき, T.S.C. のトラップ電荷量との関係
$Q_T = 5.09 \times 10^{-8}$ (C/cm²)
$E_a = 0.4$ eV
I (μμA/cm²)
3
2
1
300
400
T (K)
$en_d d = 0.5Q_T$
$en_d \cdot d = 0.3Q_T$
$en_d \cdot d = 0$
トラップ電荷 $en_d d$