

[18016]

次世代衛星の高信頼化に資するプロトン照射衛星材料の

帯電物性に関する研究

Charge accumulation phenomena on satellite materials irradiated by proton for high reliability of next generation satellite

三宅弘晃 ^{#A)}, 榎海星 ^{A)}, 千葉潮 ^{A)}, 田中康寛 ^{A)},
Hiroaki Miyake ^{#A)}, Kaisei Enoki ^{A)}, Ushio Chiba ^{A)}, Yasuhiro Tanaka ^{A)}
^{A)} Tokyo City University

Abstract

Spacecrafts are sometimes seriously damaged by electrostatic discharge in covering polymeric materials. Various polymeric materials are used for the surface materials of spacecrafts, such as a multilayer insulator (MLI) and Optical Solar Reflector (OSR). They are charged up by irradiation of cosmic radioactive rays and high-energy charged particles, particularly such as electrons and protons. Therefore, it is necessary to investigate the charging effect on the dielectric properties of these materials. In this report, we attempted to measure a charge accumulation behavior in the Proton beam irradiated fluorinated material.

Keyword: Dielectric material, Spacecraft, Proton-beam, Space-charge distribution, PEA method

1. はじめに

人工衛星などの宇宙機は、宇宙空間の激しい温度変動から機内の温度を一定に保つために、ポリイミド (Polyimide: PI) フィルムを複数積層した Multi Layer Insulator (MLI) や太陽光反射材である Optical Solar Reflector (OSR) が使用されている。これらの絶縁材料は宇宙空間において、電子や陽子などの高エネルギー荷電粒子線に曝されることにより帯電・放電現象が発生し、衛星の運用異常を引き起こす。衛星運用異常の要因の過半数以上が帯電・放電現象が原因であるという報告もなされていることから、宇宙機を設計する際には、MLI や OSR などに使用される絶縁材料等の絶縁特性評価が重要となる^[1]。そのため、宇宙環境に起因する事故を防ぐためにも、高エネルギー荷電粒子が照射された高分子絶縁材料で生じる帯電挙動を解析することが重要となる。電子線照射によって生じる内部帯電計測に関する研究は多く報告がされているが、陽子線照射絶縁材料の電荷蓄積特性に関する研究は、当研究グループを除き実施されていない^[2-5]。

そこで本研究では、陽子線照射下における絶縁材料の帯電計測を実施している。軌道上の主たる荷電粒子の一つである陽子線照射を行った絶縁材料の電気的特性の評価を空間電荷蓄積計測から解析している。これまで、先行研究において陽子線照射後のポリイミド (PI) に対し、陽子線照射中のパルス電圧印加時および大気圧下にて高電界を印加した際の空間電荷蓄積特性をパルス静電応力 (Pulsed Electroacoustic: PEA) 法により評価を行ってきた。その結果、陽子線照射後の PI では陽子の飛程内に正負の空間電荷分極が観測され、導電率も未照射試料に比べて 10^4 倍増大する結果も得られた。今回は OSR やワイヤーハーネス被覆材として用いられる、フッ素系絶縁材料の ETFE (ethylene-tetrafluoroethylene) および FEP

(fluorinated ethylene-propylene copolymer) に対して陽子線を照射し、PI と同様に空間電荷蓄積特性の評価を行った。また、陽子線照射後の経過日数による空間電荷挙動の変化から、PI と比較し大きな違いが表れたことから陽子線照射による絶縁劣化特性の考察を行ったので以下に報告する。

2. PEA 法の原理

図 1 に PEA 法の原理図および本実験で用いた装置の概略図を示す。電荷蓄積した試料にパルス電圧を印加すると、電荷はパルス電界によって微小変位し、圧力波が発生する。PEA 法では、この圧力波を圧電素子によって検出することで、空間電荷分布を計測する手法である。この圧力波の強度は蓄積している電荷の量と印加したパルス電界に比例し、観測される信号の時間差が電荷の蓄積位置と対応している。

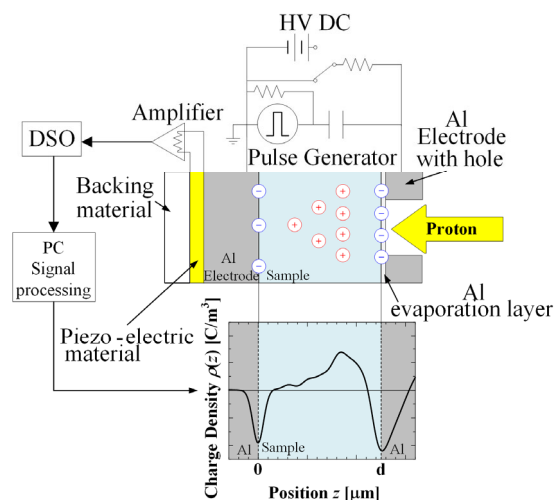


Fig. 1 Schematic diagram of PEA method

[18016]

そのため、この信号を測定することにより、試料内の電荷蓄積量と厚さ方向の分布が計測出来る。

3. 陽子線照射中のフッ素系絶縁材料の測定結果と考察

3.1 測定試料及び測定条件

陽子線照射最中において試料内部での帯電現象を観測すべく小型 PEA 装置を製作し実験を行った。測定試料に Sheldahl 社製の試料厚さ 125 μm の Al-FEP (fluorinated ethylene-propylene copolymer)を用いた。試料の照射面側にはパルス電圧を印加するためにアルミ蒸着が施されている。図 1 に示すように照射側の電極に照射口が設けられており、照射陽子を試料に直接照射できる構造となっている。パルス電圧は 200 V とし、空間電荷分布の測定は陽子線照射前から照射中・後と連続的に 10 秒間隔で行った。陽子線照射は加速エネルギーを 2 MeV、電流密度を 15, 30 nA/cm^2 とした。照射時間は 15, 30 nA/cm^2 照射でそれぞれ 60, 30 分とし両条件で照射陽子の総量を $3.4 \times 10^{18} \text{ m}^{-2}$ と等量になる様に設定した。

3.2 陽子線照射中における FEP の測定結果

図 2(A)(B)にそれぞれ電流密度 30, 15 nA/cm^2 照射時の FEP 内の測定結果を示す。同図(a) に陽子線照射時の FEP 内の空間電荷分布の経時変化を表すカラーチャートを、同図(b)に陽子線照射中、後の FEP 内の空間電荷分布を照射開始直後から 10 分毎の波形(図中実線: 照射中、破線: 照射後)を、同図(c) に FEP 内部の試料内蓄積正電荷総量(同図(b)の電荷分布より試料内の 0 点交差間の正電荷量を積分)の経時変化を示す。尚、同図(a)内の縦破線は照射陽子の計算飛程(66 μm)を、同図(b)中の実線及び破線はそれぞれ照射中、後の空間電荷分布波形を示しており、その測定時間を合わせて同図(a)中にも同様の横実線と破線で示している。

同図(a),(b)より、両条件において正電荷蓄積量は照射中に最大となり、その後照射時間の経過とともに減少している。同図(c)からも、蓄積正電荷量は 30, 15 nA/cm^2 照射時においてそれぞれ照射開始後 13, 28 分で飽和し、その後減少していく事が分る。また正電荷蓄積ピーク位置は照射面側に移動し、正電荷の蓄積位置は計算飛程を超えて対向電極側近傍までドリフトし蓄積量が増加する挙動も確認された。照射後(図中青色の点線)、30 nA/cm^2 照射時では計算飛程を境に陽子未到達領域内において電荷が残留し、陽子通過領域では蓄積電荷の大半が消失している。15 nA/cm^2 照射時では試料全域において明確な電荷蓄積は観測されなかった。

照射中の試料内蓄積正電荷は照射陽子に起因したものであると考えられる。照射中にも関わらず蓄積量が減少する原因は、陽子線照射により発生する放射線誘起伝導(radiation induced conductivity: RIC)による陽子通過領域の導電率の上昇及び、分子構造の変化による電極-試料界面における注入障壁の低下が考えられる^[6]。陽子線照射の時間とともに試料の導

電率の上昇及び注入障壁の低下が発生し、電極からの注入電子により中和されピーク位置の変化や蓄積正電荷の減少が生じたと考えられる。RIC の発生原因として高エネルギー陽子による分子鎖の切断や試料の放射化等があげられる。一般的に 2.0 MeV 以上のエネルギーのイオン照射を行った場合は試料が放射化する場合があり、照射直後は本試料も γ 線を放出している事が確認されている。分子鎖切断においては、先行研究により恒久的な変化であることが確認されている^[4]。以上より、RIC や放射化が空間電荷蓄積挙動に影響を及ぼしている可能性が考えられる。

また、15 nA/cm^2 照射時においては照射中に急激な正電荷蓄積の低下や照射後の電荷残留が確認されなかった点については、試料単体への照射時に試料表面で放電が観察されている為、放電によって生じた可能性がある。ETFE における陽子線照射中の内部帯電現象については今後の照射実験によって明らかにしていく。

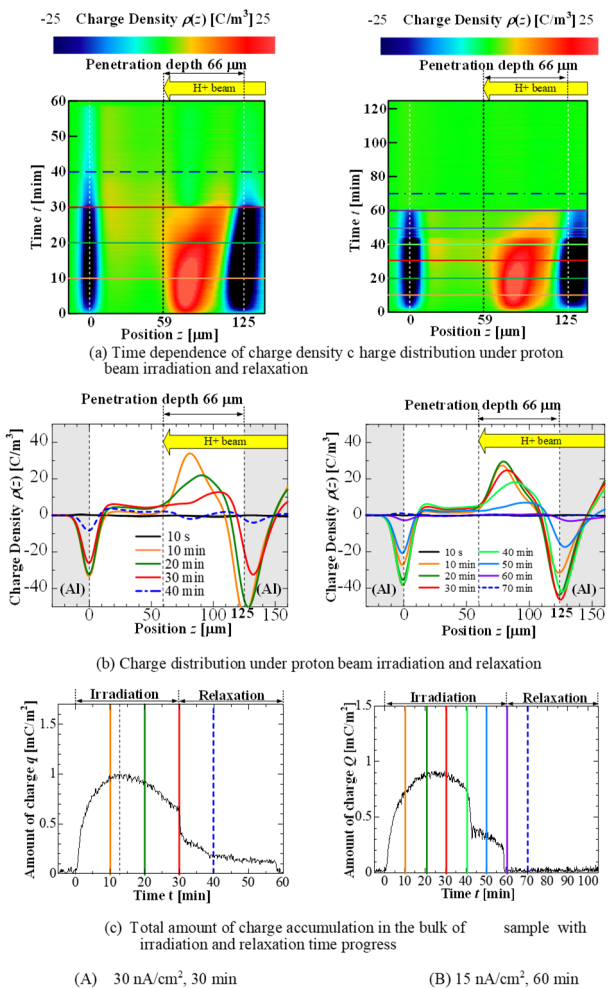


Fig. 2 Charge distribution and Total charge amount in the bulk of FEP under each irradiation condition

[18016]

4. 陽子線照射中のフッ素系絶縁材料の測定結果と考察

陽子線照射によって照射領域の導電率が上昇したと考えられるので照射後直試料に直流電圧を印加し恒久的に絶縁性が低下したかについて実験を行い調査した。

4.1 測定試料及び測定条件

測定試料は、公称試料厚さ 100 μm のフィルム状の ETFE (旭ガラス社製) と FEP (淀川ヒューテック社製) である。試料に対し、加速エネルギー 2.0 MeV、照射電流密度 30 nA/cm² の陽子線を 30 分間照射した。陽子線照射は真空度 10⁻⁵ Pa オーダーの真空環境下で実施した。尚、2.0 MeV 照射時の ETFE 及び FEP 試料内における照射陽子の計算飛程は、それぞれ 78, 66 μm である。

陽子線照射後、試料を真空チャンバーから取り出し、その際の空間電荷分布を測定した。本測定に用いた空間電荷測定装置は、位置分解能 10 μm 程度の一般的に広く普及されたパルス静電応力法による空間電荷測定装置を用いた^[6]。常温大気圧下において照射から約 1 時間および 1 年間経過後に空間電荷測定装置に設置して直流電界 100 kV/mm に相当する直流高電圧を印加し、その際の空間電荷分布を測定した。また、照射経過 1 日後の試料を用いて外部回路電流法による導電率解析を行った。両実験において課電する際、照射面を高電圧電極に接した。測定時間は 60 分間である。また、陽子線照射には量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所の 3MV タンデム加速器を用いた。

4.2 未照射フッ素系試料の無電荷蓄積

まず、図 3 に未照射の(A)ETFE および(B)FEP における空間電荷分布の測定結果を示す。これらの同図中は、縦軸は時間を、横軸は試料厚をそれぞれ示しており、正及び負電荷蓄積をそれぞれ暖色系と寒色系の色に示している。同図より、未照射の ETFE および FEP では、100 kV/mm の高電界下においても試料内に空間電荷の蓄積は観測されなかった。

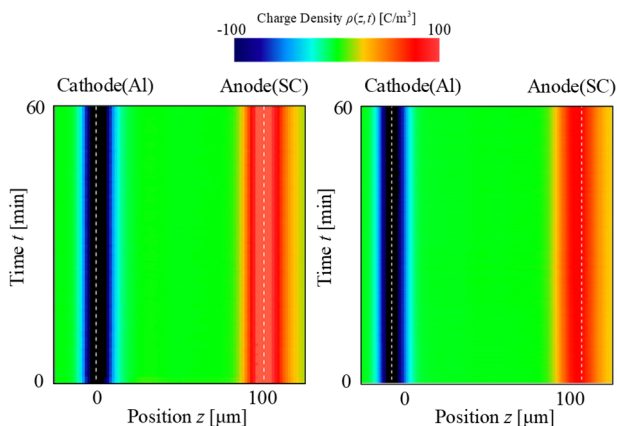


Fig. 3 Space charge distribution in fluorinated film under DC stress

4.3 陽子線照射 FEP における多量の正電荷蓄積

陽子線を照射した FEP の空間電荷分布測定結果を図 4 に示す。同図中(A)照射から 1 時間経過した試料、(B)照射から 30 日経過した試料での測定結果を示している。また同図中、(a)には電荷密度の経時変化のカラーチャートを、(b)に空間電荷分布波形、(c)に電界分布波形、(d)に電圧印加直前の短絡状態での電荷分布波形を示している。

同図(A-a)より、陽子線を照射 1 時間後の試料に直流電圧を印加すると、陰極近傍において正電荷の蓄積が観測された。電圧印加中の経時変化から、電圧印直後から時間経過にともない陰極近傍へ正電荷が移動するような挙動が観測された。同図(A-c)より、これらの空間電荷の蓄積によって試料内部の電界も強調されており、陰極近傍で約 160 kV/mm 近くまで達している。同図(B-a)より、陽子線照射から 30 日経過した FEP においても、電圧印加直後から試料内部に多量の正電荷の蓄積が観測され、電圧印加にともない陰極近傍の正電荷蓄積は増加した。同図(A-a)と比較すると、両者で高電圧印加に伴う正電荷蓄積のピーク位置が同じ位置にあり陰極近傍試料内であることが観察された。同図(B-c)より、空間電荷の蓄積によって試料内部の電界も同様に強調されており、約 160 kV/mm まで達していると考えられ陽子線照射 FEP では照射経過時間に関係なく、電圧印加によって多量の正電荷が注入することから恒久的な照射領域の導電率の上昇が考えられる。

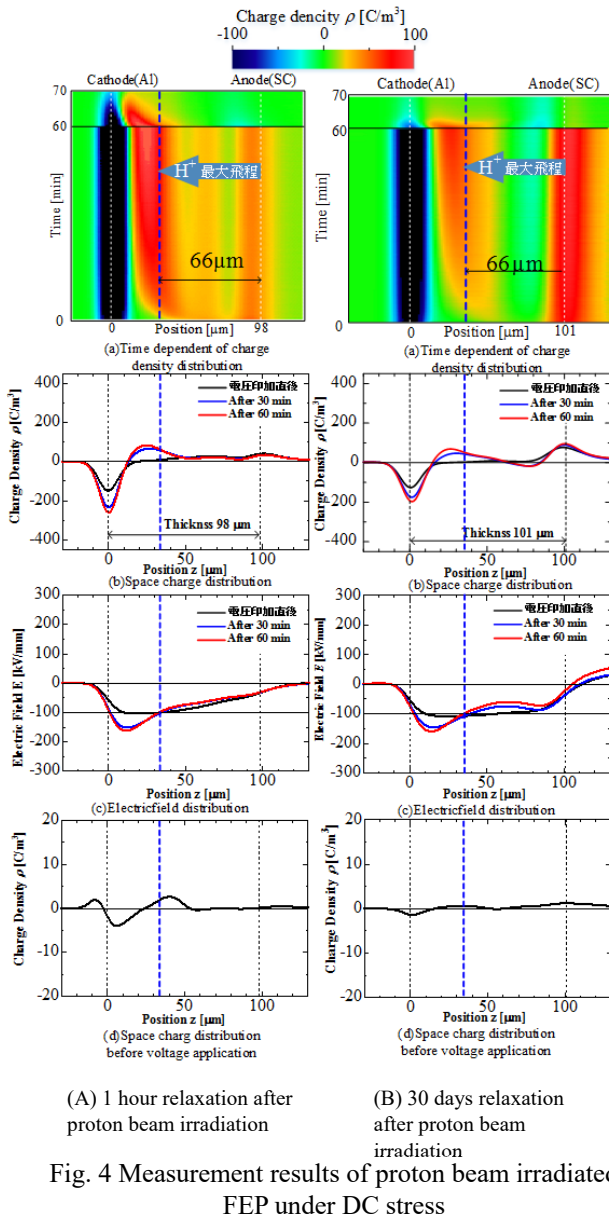
4.4 陽子線照射 ETFE における正電荷蓄積

2.0 MeV の陽子線を照射した ETFE の空間電荷分布測定結果を図 5 に示す。同図の構成は図 4 と同様である。

同図(A-a)より、陽子線を照射してから 1 時間後の ETFE に直流電圧を印加すると、陰極近傍において正電荷の蓄積が観測された。電圧印加中の経時変化から、電圧印加にともない正電荷の蓄積量が増加し陰極近傍へ正電荷が移動するような挙動が観測された。同図(A-c)より、これらの空間電荷の蓄積によって試料内部の電界も強調されており、約 200 kV/mm まで達している。同図(B-a)より、陽子線照射から 1 年経過した ETFE では、電圧印加直後試料内部に正電荷の蓄積が観測された。電圧印加にともない蓄積電荷は増加し、(A-a)と比較すると、蓄積電荷は陰極近傍へ移動せずその場で蓄積電荷量が増加していく挙動を観察することができた。(B-c)より、空間電荷の蓄積によって試料内部の電界も強調されており、約 150 kV/mm まで達している。また、両者において短絡後においても電圧印加中に蓄積した正電荷が残存していることがわかる。

ここで、陽子線照射 ETFE 内部に蓄積した正電荷の発生原因について考える。まず陽子線照射による正電荷は照射領域内部に存在すると考えられるが、同図(A-d)および(B-d)の高電圧電圧印加前の短絡時における空間電荷分布測定より、照射直後において陽子線照射によると考えられる微量の正電荷蓄積が

[18016]



観測されたのに対し 30 日経過試料では観測されなかった為、照射陽子の残留のみでこのような大量な正電荷蓄積が得られたと言う訳でない事が理解できる。次に照射陽子による材料への影響を考えると、陽子線照射によって試料内部の導電率の上昇と、照射陽子によって生じた分子鎖切断で形成されたラジカル等による注入障壁の低下が発生したものと推測され、陽極の誘導電荷が試料内部へ注入したので電圧印加時において多量の正電荷の蓄積が観測されたと考えられる。このことから、30 日経過後の試料においても陽極から電荷の注入が観測されたことから、陽子線照射にともない恒久的な材料変化により導電率の変化が観測されたと考えられる。

更に、照射 1 時間後の試料において照射 30 日後の蓄積電荷挙動と差異が生じた理由としては、本照射試料においては、照射陽子が通過した領域において放射化した状態であることが原因の一つとして考え

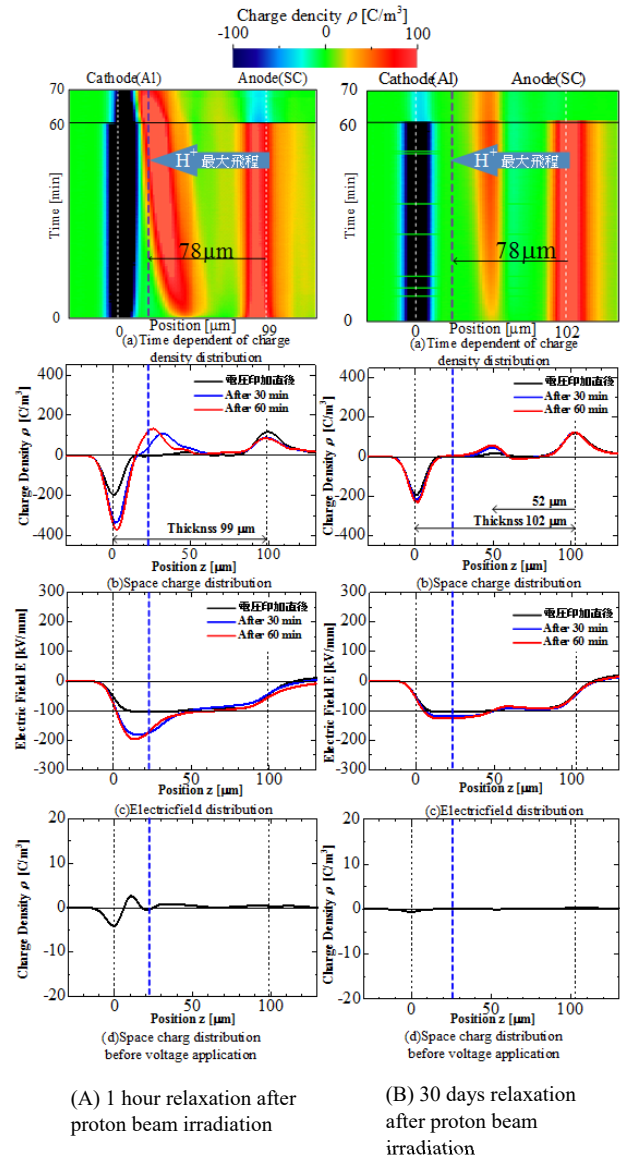


Fig. 5 Measurement results of proton beam irradiated ETFE under DC stress

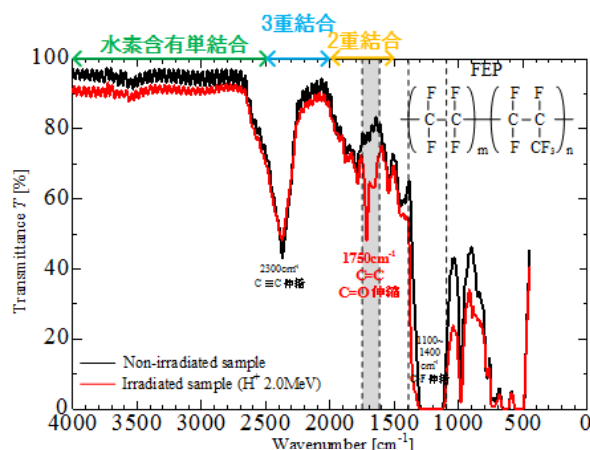
られる。よって放射化領域からγ線が発生しているため、電子正孔対が生成された状態となるが、γ線照射による電子正孔対は生存時間が短く、数時間から数日で再結合し消滅する事が予想される。電子正孔対が生成されている状況では、生成されていない状況より、試料内に形成された空間電荷の移動が容易になっている事が推測される。よって、照射 30 日後の試料においては電子正孔対が消滅している為、陽子線照射による分子構造の不可逆的な変化による効果のみが観察されたと考えられ、照射 1 時間後と 30 日後の空間電荷分布の形成の差につながったものと考ええる。

5. 陽子線照射による分子構造の変化

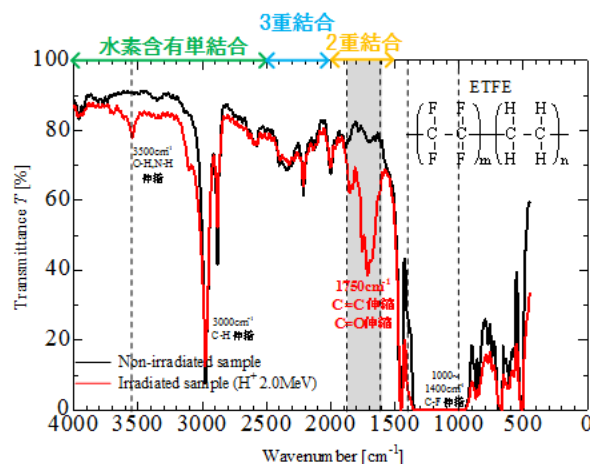
5.1 FT-IR による陽子線試料の構造解析

陽子線照射による分子構造の変化を調べるため

[18016]



(a) FEP の実験結果の比較



(b) ETFE の実験結果の比較

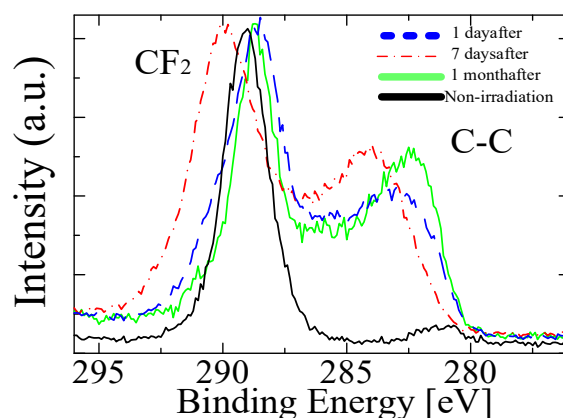
Fig. 6 Comparison FT-IR spectrum of non-irradiated and proton irradiated film

FT-IR 測定を未照射及び陽子線照射 FEP, ETFE を用い測定を行った。照射試料においては照射終了後大気圧下において 1 日経過した際に試料を用いて測定を行った。照射条件は加速エネルギー 2.0 MeV, 照射電流密度 30 nA/cm², 照射時間 30 分である。

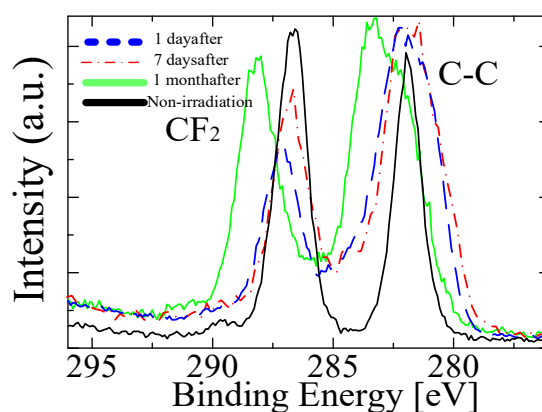
今回の測定方法として透過法を用いて測定を行った。図 6 に FEP および ETFE での FT-IR 測定結果を示す。同図中の黒線は未照射試料、赤線は陽子線照射試料の測定結果を示している。

同図より、FEP では未照射試料と照射試料の両者で主に 1000~1400 cm⁻¹ にて大きな吸収帯が存在し、この位置のピークに両者での違いは観測できなかった。構造式より、吸収スペクトルは C-F 結合だと考えられる。また、陽子線照射試料と未照射試料を比較すると陽子線照射試料では 1750 cm⁻¹ にて新たな吸収帯の生成が生じ 2 重結合の振動領域から C=C や C=O の伸縮運動だと考えられる。

また、ETFE でも同様に未照射試料と照射試料では主に C-F の伸縮運動である 1000~1400 cm⁻¹ にて大きな吸収帯が存在し、この位置のピークに両者での違いは観測された。照射試料では 3500 cm⁻¹ にて Si の新たな吸収帯が生成され、1750 cm⁻¹ あたりに C=C,



(a) FEP のナロースキャン結果の比較



(b) ETFE のナロースキャン結果の比較

Fig.7 Comparison XPS spectrum of non-irradiated and proton irradiated film

C=O の伸縮運動が出現した^[7]。

以上の結果から、陽子線照射により FEP および ETFE ではまず分子鎖切断が発生し、その後架橋反応の増加や試料の酸化などが生じたものと考えられ、陽子線照射による分子構造変化の変化が観測された。

5.2 XPS による陽子線試料の構造解析

前節までに陽子線照射によってフッ素系試料内に不可逆的な構造変化が生じている事が推察された。そこで、X 線光電子分光 (X-ray Photoelectron Spectroscopy: XPS) を用いて、照射試料の化学・電子構造解析を行った。未照射及び陽子線照射 FEP, ETFE を用い、照射終了後大気圧下において 1, 7, 30 日経過した際に試料を用いて測定を行った。照射条件は加速エネルギー 2.0 MeV, 照射電流密度 30 nA/cm², 照射時間 30 分である。

図 8 に XPS による実験結果を示す。同図(a)に FEP での C_{1s} のナロースキャン結果を、同図(b)に ETFE での C_{1s} のナロースキャン結果を示す。縦軸は光電子強度 [arbitrary units (a.u.)], 横軸は結合エネルギー [eV] である。(a)より FEP における C_{1s} の高分解能スペクトルより、未照射試料では主に CF₂, C-C, のスペクトル

[18016]

ルが観測されたが、陽子線照射試料では C-C 結合に関するピークが相対的に増加していることが分かる。また、未照射試料では観測されなかった C-O によるピークが 283 eV, C-F によるピークが 287 eV あたりに新たに観測され、これらのピークは経過時間に関わらず照射試料で観測されたことから陽子線照射によって恒久的に分子構造が変化し新たなピークが生成されたと考えられる。(b)より ETFE における C_{1s} の高分解能スペクトルより、未照射試料では主に CF_2 , C-C, の二本の大きなスペクトルが観測されたが、陽子線照射試料では C-F 結合に関するピークが減少していることが分かる。また、C-O 結合のピークが C-C 結合のピークに隣接しているため照射試料のピークでは C-C 付近のピークの幅が増加した。さらに 285 eV あたりに C-F の新たなピークが生成されたと考えられる。

6. まとめ

陽子線照射中において陽子線照射領域では、照射中にも関わらず試料内部の蓄積正電荷量が減少し、また陽子の飛程を超えて正電荷の蓄積も確認された。この電荷蓄積挙動は照射フルエンスに依存している結果が得られた。未照射の ETFE および FEP は試料内部に空間電荷の蓄積は観測されない一方、陽子線照射 ETFE および FEP では電圧印加後、試料内部に多量の正電荷の蓄積が観測され、この現象は照射から 30 日経過した試料においても観測された。このことから、陽子線照射を行うと材料の放射化や陽子線照射時の発熱や照射エネルギーによる分子鎖切断などによる恒久的な分子構造の変化が考えられる。

陽子線照射によって発生機構が異なる複数の RIC による現象であると推測する。また、照射 ETFE および FEP 内部では、高電圧印加時に空間電荷の蓄積が確認され、正孔・電子対の生成や分子鎖の切断や酸化や架橋が発生していることが考えられる。そこで今後、陽子線の照射時間や線量を変化させることによる空間電荷挙動や、陽子線照射試料の分子構造変化を評価することによって、陽子線照射による絶縁劣化特性変化のメカニズムを明らかにする。

参考文献

- [1] H. C. Koons, J. E. Mazur, R. S. Selesnick, J. B. Blake, J. F. Fennell, J. L. Roeder and P. C. Anderson, "The Impact of the Space Environment on Space Systems", Proceedings of the 6th Spacecraft Charging Technology Conference, Air Force Research Laboratory, pp.7-11, 1998.
- [2] V. Griseri, C. Perrin, K. Fukunaga, T. Maeno, D. Payan, L. Levy and C. Laurent, "Space-Charge Detection and Behavior Analysis in Electron Irradiated Polymers", IEEE Trans. on Plasma Science, Vol. 34, No. 5, pp. 2185-2190, 2006
- [3] Kenichiro Nagasawa, Masato Honjo, Hiroaki Miyake, Rikio Watanabe, Yasuhiro Tanaka, Tatsuo Takada, Charge Accumulation in Electron Beam Irradiated Various Polymers, IEEE International Symposium Electrical Insulating Materials, pp147-150,2008
- [4] Hiroaki MIYAKE, Yasuhiro TANAKA, Tatsuo TAKADA, Characteristic of charge accumulation in glass materials under electron beam irradiation, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 14, Issue 2, pp.520-528, 2007
- [5] Hiroaki Miyake, Yasuhiro Tanaka, Charge Distribution in Polymethyl Methacrylate and Quartz Glass Irradiated by Protons, Sensors and Materials, Vol. 29, No. 8, pp.1213-1222, August 2017
- [6] Tatsuo TAKADA, Hiroaki MIYAKE, Yasuhiro TANAKA, "Pulse Acoustic Technology for Measurement of Charge Distribution in Dielectric Materials for Spacecraft", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 34, No. 5, pp.2176-2184, 2006
- [7] M.A. Parada, A. de Almeida, C. Muntele, D. Ila, "Effects of MeV proton bombardment in thin film PFA and FEP polymers", Surface & Coatings Technology 196, pp.378-382, 2005