

プロトン照射されたポリイミドフィルムにおける帯電現象

内山龍*, 沼田誠也, 三宅弘晃, 田中康寛, 高田達雄 (東京都市大学)

Charging Characteristics in Polyimide Film Irradiated by Proton

Ryo Uchiyama, Seiya Numata, Hiroaki Miyake, Yasuhiro Tanaka, Tatsuo Takada (Tokyo City University),

ABSTRACT

Spacecraft sometimes have a serious damage due to the electro static discharge accident. It is said that the charge accumulation in dielectric materials on spacecraft irradiated by high energy charged particles in space environment causes the discharge accident. Therefore, we need to investigate the charge accumulation characteristics in the bulk of dielectric materials. We have been developing a system for measuring internal charge distribution in dielectric materials using Pulsed Electro-Acoustic (PEA) method. Using the system, we tried to measure the charge distribution after proton beam irradiated polyimide (PI) film, which has been used as a thermal control layer of spacecraft. From the result, it is found that positive charge accumulates in PI film rapidly up to a certain saturated value, then it gradually decreases during the proton beam irradiation. As the reason for the phenomenon, we consider the RIC (Radiation Induced Conductivity) by proton beam. In this paper, we show the typical charge distribution under proton beam irradiation and the conductivity in PI irradiated by proton beam. As the result, it is found that the relationship of decrease processes in amount of positive charge and RIC.

キーワード：宇宙機，絶縁材料，プロトン，電荷分布，PEA法，導電率，ポリイミド

(Key words: Spacecraft, Dielectric material, Proton-beam, Charge distribution, PEA method, Conductivity, Polyimide)

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搭載機器の温度を一定に保つため、高分子の多層断熱材 (Multi Layer Insulator : MLI) で表面を覆われている。しかし、MLI が電子や陽子などの高エネルギー荷電粒子線に曝されると、絶縁材料内部に荷電粒子が侵入し帯電する。帯電量が増加すると、絶縁材料と宇宙機とに電位差が生じ、絶縁材料表面に静電放電 (Electro-static discharge : ESD) が発生する。放電は絶縁材料の劣化や、放電による電磁波ノイズの影響により宇宙機内部の電子機器の故障・誤作動を引き起こし、最悪の場合、宇宙機の故障につながるという報告がなされている⁽¹⁾。そのため、宇宙機的设计には絶縁材料の電気的特性評価が重要な要因となるが、現在検討されている宇宙機設計のガイドラインでも高エネルギー荷電粒子が照射された絶縁材料の電気的特性はあまり考慮されていない。

そこで本研究では、宇宙機の絶縁材料中に生じる内部帯電のメカニズムを解明するために、パルス静電応力 (Pulsed Electro-acoustic : PEA) 法を用いた内部帯電計測装置を開発した。

また、現在、電子線照射下における内部帯電計測は国内外で行われているが、プロトンが照射された絶縁材料中の電荷分布計測はほとんど行われていない^(2,3)。そこで本研究では、電子線以外の荷電粒子 (プロトン) 照射下における内部帯電計測に着目し、宇宙環境を模擬した真空チャンバー内において、プロトンを照射したポリイミド (PI)

などの絶縁材料内部に蓄積する電荷の分布を計測してきた。その結果、PIにおける正電荷蓄積が飽和値に達すると、照射中にも関わらず蓄積電荷量が減少するといった傾向が得られた。この現象が観測された要因として、我々はプロトンが侵入した範囲における放射線誘起伝導 (Radiation Induced Conductivity : RIC) が影響していると考えた。そこで、本報告で宇宙機誘電体として多く用いられているPI系高分子絶縁材料にプロトンを照射し、プロトン照射中にPI内部に蓄積する電荷の分布を観測するとともに、プロトン照射されたPIの導電率計測を行うことで、電荷蓄積過程とRICとの関係を調査した結果を紹介する。

2. 測定方法

2-1. パルス静電応力法 (PEA 法) の原理

図1にPEA法の原理図を示す。電極で挟んだ試料にパルス電界を印加することにより、空間電荷の存在する各位置で電荷密度に比例した静電応力が瞬間的に作用し、試料に蓄積している電荷が微小変位する。これにより、発生した圧力波が下部電極を伝搬し、センサー (圧電素子) に到達して、電気信号に変換される。この際、圧電素子に届く圧力波は試料内の位置 (深さ方向) によって到達する時間が異なるために、電荷分布は出力信号の時間変化として測定されることになり、電荷が蓄積している位置が計測できる。また、発生する圧力波の振幅は、蓄積している電荷の密度に比例するため、圧電素子で検出する電気信号の大きさは試料内の電荷密度に比例している。圧電素子から出力され

る電圧信号はアンプで増幅され、オシロスコープにより観測された信号をコンピュータに取り込み、信号処理を施すことによって空間電荷分布を得ることができる。

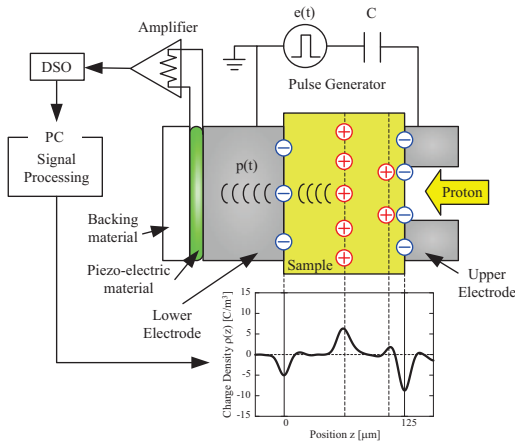


図1 PEA法原理図

Fig.1 Principle of PEA method

2-2. PEA測定システム

図2にプロトン照射下におけるPEA測定システムの概略図を示す。本装置は荷電粒子を試料に照射するために、照射窓を設けており、放射線照射下での空間電荷分布計測を可能としている⁽⁴⁾。また、装置のサイズは縦68 mm、横48 mm、高さ24 mmと比較的小型であり、小さなサイズのチャンパーにも対応できるようになっている。測定では、試料にパルス電圧(電圧250 V、パルス幅3.4 nsec)を印加し、発生した圧力波を電気信号に変換するための圧電素子は、厚さ9 μmのポリフッ化ビニリデン (Poly Vinylidene Fluoride: PVDF) を使用しており、装置の位置分解能は約10 μmである。

測定システムは装置本体、パルスジェネレータ、AMP用電源($V_{DC}=12\text{ V}$)、デジタルストレージオシロスコープ、PCから構成され、PEA装置本体は真空チャンパー(ターゲットチャンパー)内に設置される。但し、ターゲットチャンパー

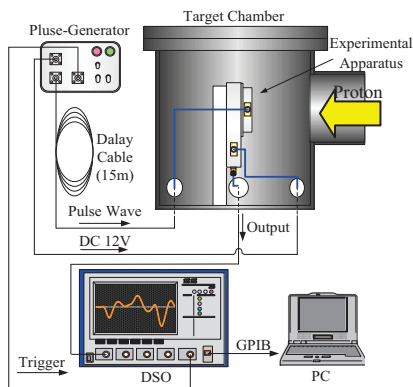


図2 PEA測定システム

Fig.2 Schematic diagram of PEA measurement system

の構造は実験施設によって異なり、図2はその代表例を示している。

2-2. 導電率測定システム

図3にASTM法に基づく導電率測定システムの概略を示す。本装置は荷電粒子の照射範囲(30 mm四方)に対応させるため、漏れ電流検出部の電極径を24 mmとし、荷電粒子の照射範囲のみの漏れ電流を計測するように設計されている。

測定システムは導電率測定装置本体、高電圧電源、ピコアンメータ、PCから構成されている。なお、この測定装置にはガード電極が設置してあり、試料に直流電圧を印加することによって、試料中を通過した漏れ電流をピコアンメータにより測定し、測定された電流値をPCに取り込むことで漏れ電流の経時変化を得ることができる。

2-3. 導電率算出法

試料は抵抗とコンデンサが並列に接続された等価回路として表され、直流電圧印加により測定される電流密度は、印加直後に大きく立ち上がった後、時間経過に依存して減衰する。通常は吸収電流と呼ばれる減衰する電流の後に漏れ電流と呼ばれる一定の電流が観測され、その漏れ電流をもって、導電率が評価される。しかし、この減衰が非常に長時間継続し、漏れ電流を評価することが困難な場合が多い。また、材料によっては、一旦電流が減少した後、再び増加する傾向を見せる場合もあるため、今回の実験では、電流を観測した2時間内で最も小さな電流値を示した時点の電流値を用いて、伝導電流を算出した。今回の実験の場合、1種類の試料を除き、測定終了時の2時間後に最低の電流密度を示していたので、特に断らない限り、導電率は2時間値を用いて表している。

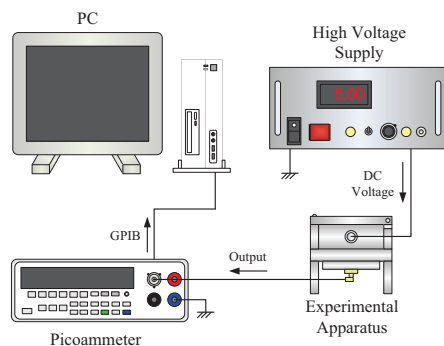


図3 導電率測定システム

Fig.3 Schematic diagram of Conductivity measurement system

3. プロトン照射下におけるリアルタイム帯電計測

3-1. 測定試料および実験条件

測定試料として厚さ 125 μm のポリイミドフィルム(宇部興産社製: Upilex[®]) (以下 PI) を用いた。PI は実際の宇宙機の MLI として用いられている。また、試料にはパルス電圧を印加するために、試料表面に電極をアルミニウム蒸着している。プロトン照射実験ではチャンバー内の真空度を約 1×10^{-5} Pa とし、室温下で、加速エネルギー 2.0 MeV、電流密度 0.3, 3, および 30 nA/cm^2 のプロトンを測定試料に照射し、その際の照射中、および照射後の PI 内の空間電荷分布をそれぞれ測定した。なお、電流密度 0.3 nA/cm^2 のプロトンは太陽活動極大期の粒子数に相当する。各測定における実験条件を表 1 に示す。

また、プロトン照射実験には日本原子力研究開発機構の高崎量子応用研究所の 3MV タンデム加速器を用いて行った。

表 1 実験条件

Table.1 Measurement condition

Energy [MeV]	Current Density [nA/cm^2]	Irradiation Time [min]
2.0	30	30
	3	
	0.3	

3-2. 実験結果および考察

図 4 に照射電流密度がそれぞれ(a)30, (b)3, (c)0.3 nA/cm^2 における、プロトン照射中の PI 内空間電荷分布を示す。なお、図中赤線は照射開始 30 秒後を、青線は 30 分後を、また測定中に電荷の蓄積が最大となった場合を緑線で、それぞれを示している。各図では、プロトンを電荷分布図の右側から照射したように示してある。図 4 の電荷分布の結果より、照射面から試料内約 70 μm まで、正電荷の蓄積が確認された。また、これら正電荷の蓄積は照射電極側にのみ見られ、その他には、照射電極上および対向電極上には、正電荷の蓄積により誘導された負電荷が観測されているのみである。これはプロトンが試料内のある位置まで侵入し、それ以上は深く侵入していないことを示している。

また、同照射条件における PI 内のプロトン飛程(図中縦の破線)を数値計算により算出したところ、59 μm であった⁽⁵⁾。図 4(a)より正電荷蓄積分布のピーク値は約 57 μm であり、装置の位置分解能が 10 μm 程度であることを考慮すると、算出した飛程と実測値ではほぼ一致していると考えられる。すなわち、同図における正電荷分布は、プロトン照射により試料内に蓄積した電荷が観察されたものと考えられる⁽⁶⁾。また、同図(b), (c)より、照射面からの電荷蓄積位置は、同図(a)と同様の結果が得られている。つまり、飛程は

照射されるプロトンのエネルギーによって決まり、電流密度の違いによる差は、この測定結果の表示方法だけでは明確ではない。そこで、図 5 に照射中・照射後における PI 内蓄積総電荷量の経時変化を示した。蓄積総電荷量は電荷分布の測定結果より、試料内の蓄積正電荷分布を積分するこ

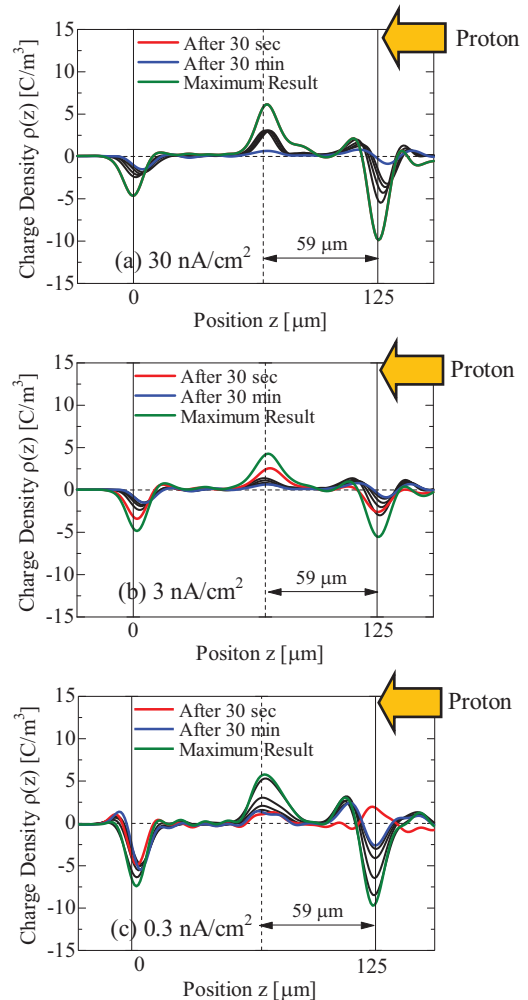


図 4 プロトン照射下における電荷分布

Fig.4 Charge distribution under proton beam irradiation

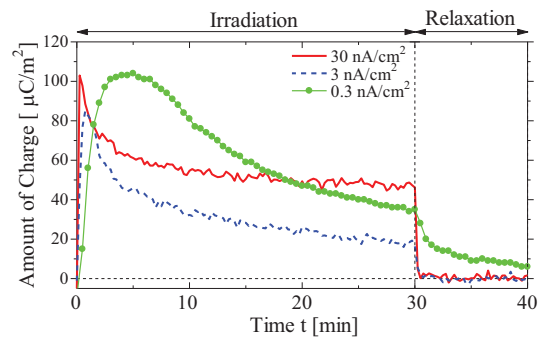


図 5 蓄積総電荷量の経時変化

Fig.5 Time dependence on accumulated amount of charge

とにより算出した。まず、最大蓄積量に注目し同図(a), (b)を比較すると、電流密度が10倍異なるにもかかわらず、最大量がそれぞれ103 $\mu\text{C}/\text{m}^2$ 、85 $\mu\text{C}/\text{m}^2$ とあまり変化していないことがわかる。さらに同図(c)より、電流密度を1/100とした0.3 nA/cm^2 の場合も最大蓄積量は104 $\mu\text{C}/\text{m}^2$ であり、他の2つとは顕著な差が見られない。

次に蓄積量の経時変化をみると同図(a)の結果よりプロトン照射開始直後に蓄積量は最大となり、その後は照射中にもかかわらず蓄積量が減少し、照射開始10分後には55 $\mu\text{C}/\text{m}^2$ の一定値を取り、電荷量の変化は観察されなくなった。同図(b)においては照射開始2分後に最大となり、その後減少に転じている。さらに(b)の場合より電流密度を1/10とした同図(c)においては、5分後に最大値に達している。

照射後における正電荷の蓄積量の経時変化に着目すると、照射する電流密度が高い場合には、照射終了直後に素早く電荷が減少し、1分後以降は電荷が観察されていない。一方、電流密度が0.3 nA/cm^2 の場合では、10分後においても正電荷の蓄積が確認できる。これらより、照射電流密度を変化させると最大蓄積量に達する時間、および照射後における電荷の減少時間が変化することがわかる。すなわち、照射電流密度を高くすると飽和に達する時間が早くなり、照射後の電荷の減衰が早くなる。一方、照射電流密度を低くするとその逆の現象が得られた。

次に照射中の蓄積現象について考察する。実験結果では蓄積した正電荷量が飽和(最大)に達すると、その後は照射中にもかかわらず電荷量は徐々に減少していく。この現象の原因の一つとして考えられるのは、電荷が蓄積する過程と減少する過程では、試料の電気的特性が変化していると考えられる。具体的には、プロトン照射により放射線誘起伝導(Radiation Induced Conductivity: RIC)が生じたために、プロトン通過領域の導電率が上昇したと考えられる。すなわち、照射面側の導電率が時間とともに増加するために、蓄積していた正電荷が減少するものと考えられる。さらに、導電率の増加のみならず、照射面側の接地電極からの電子に対する注入障壁が減少するなどの現象も考えられる。一般にプロトンによるRICでは高エネルギーのプロトンが分子間結合を切断等することによって発生したキャリアにより、キャリア増加によって導電率が上昇するものと考えられるが、今回の結果ではキャリアの増加のみならず電荷の移動度や注入障壁の低下をも生じている可能性がある。また、照射電流密度が30 nA/cm^2 の照射開始後10分以降においてみられる総電荷量が一定値を示す状態は、プロトンの注入量と照射によって生じる正電荷量と電極(照射面側)からの注入電子の量、もしくは注入された正電荷が電界により照射電極側に戻される量が注入される正電荷の量と平衡状態にあると考えられる。

以上より、プロトン照射中における蓄積現象の主な要因は試料内で生じたRICであると考えられる。そこで次にプ

ロトン照射したPIの伝導電流を実際に計測し、RICの評価を行った。

4. プロトン照射PIにおけるRIC評価

ここでは、プロトン照射されたPIのRICに関して述べる。この評価に際しては、現在、宇宙機用絶縁材料の評価法の一つであるASTM法に従って、試料に高電圧を印加し、その際の漏れ電流を計測し、絶縁材料の導電率を算出した⁽⁷⁾。

4-1. 測定試料および実験条件

試料として厚さ50 μm のPIを用いて、未照射試料、およびプロトン照射された試料に直流電界100 kV/mm 印加した際の試料中を通過してきた漏れ電流のみをASTM法によって計測した。なお、測定は大気圧下において測定時間を2時間、測定間隔は2.5秒間隔で行った。また、照射試料は照射後1時間、および1-5日経過した試料を用いて計測を行った。

プロトンの照射条件は加速エネルギー2.0 MeV一定とし、電流密度30 nA/cm^2 、照射時間30分である。また、本照射試料は高崎量子応用研究所の3MVタンデム加速器を用いて照射したものである。

4-2. 実験結果

図6に未照射、および照射試料に電界100 kV/mm 印加時における電流密度の経時変化を示す。同図の未照射試料の測定結果では、電流密度は電界印加直後に最大となり、時間経過に伴って減衰し、印加2時間後に7 nA/m^2 まで減衰した。次にプロトン照射試料の測定結果より、照射後1時間、および2, 3, 5日経過した試料は未照射試料同様、時間経過に依存して電流密度は減衰し、印加2時間後にそれぞれ32 $\mu\text{A}/\text{m}^2$ 、560 nA/m^2 、83 nA/m^2 、63 nA/m^2 まで減衰した。しかし、照射後1日経過した試料においては、電界印加から約20分後において電流密度の上昇が見られ、印加約85分後に210 $\mu\text{A}/\text{m}^2$ まで上昇した後、絶縁破壊に至った。

次に図7に照射試料における導電率の経時変化を示す。なお、導電率は電流密度の測定結果より、印加電界を除くことにより算出した。なお、照射後1日経過した試料の導電率については電流密度波形より、再度電流が上昇を始める直前の最低値を用いて導電率を算出した。同図より未照射試料、およびプロトン照射された試料の導電率を比較すると、照射後1時間経過した試料は、未照射試料に対して、約1000倍の上昇となり、更に照射後1-5日経過した試料においては約500, 50, 8, 6倍であり、時間経過に依存して線形的に減衰することが確認された。また、導電率の減少は照射後3-5日においてRICの影響が緩和されている。

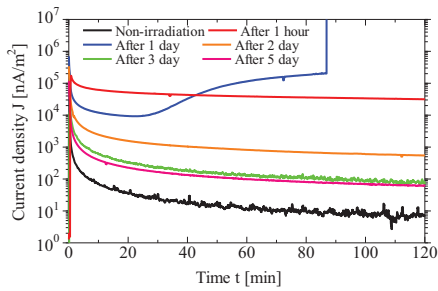


図 6 電流密度の経時変化

Fig.6 Time dependence of current density

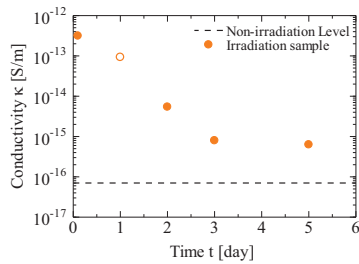


図 7 導電率の経時変化

Fig.7 Time dependence of conductivity

以下に、照射試料における導電率の上昇挙動について述べる。ここではまず、図 5 の電流密度 30 nA/cm^2 のプロトン照射試料の蓄積総電荷量の測定結果より、最大蓄積電荷量と飽和時における正電荷の減少した割合に着目した。減衰度を算出すると正電荷の減少度は 50% であり、照射開始直後に比べて、照射開始 10 分後では、プロトンが試料外に放出されやすい、もしくは、外部からの電子の注入が発生しやすいことが考えられる。つまり、プロトン照射によって試料内で RIC が生じたことにより、試料内部に蓄積した正電荷が照射面側に引き戻される電荷の量、もしくは照射面からの電子の注入量が多いと考えられる。また、導電率の時間経過による終了直後減少は、RIC の影響が時間経過により、緩和されたためであると考えられる。すなわち、導電率は、プロトン照射後一旦は上昇するものの、その後、時間経過とともに再び減少し、絶縁性が回復すると思われる。なお、照射終了 1 日後の試料に電圧印加した際に見られた絶縁破壊については、現在解析途中の段階であるため、再現性を含めて、今後さらなる検討が必要である。

5. まとめ

プロトンを照射することによって試料内に正電荷の蓄積が確認できた。また、観測されたプロトンの侵入深さは、数値計算によって求めた値とほぼ一致していることが確認できた。さらに、プロトンを照射中において蓄積電荷が減

少するということが照射電流密度に依らず、共通して言えることがわかった。この電荷の蓄積挙動に関しては、高電流照射の場合は照射開始直後から電荷が素早く蓄積し、照射後は素早く減少することが確認された。一方、低電流照射の場合には緩やかに蓄積し、減少することもわかった。よって、プロトンの照射によって試料にダメージが与えられ、電流値が大きいくほど与えるダメージも大きいと考えられる。また、プロトンを照射することで絶縁材料の導電率が変化すると考えられるが、これらについては、今後さらに検討する予定である。

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, "Analysis of Electron Behavior in Polymeric Films During Electronic Irradiation", 2005 Annual Report CEIDP, pp 645-648, 2005
- (3) Tatsuo TAKADA, Hiroaki MIYAKE, and Yasuhiro TANAKA, "Pulse Acoustic Technology for Measurement of Charge Distribution in Dielectric Materials for Spacecraft", IEEE NPSC Transactions on Plasma Science, Vol. 34, No. 5, pp.2176-2184, 2006
- (4) T.Takada, "Acoustic and Optical Methods for Measuring Electric Charge Distributions in Dielectrics", IEEE Trans. DEI, Vol.6, No.5, pp.519-547, 1999
- (5) J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, "The Stopping and Range of Ions in Solids", Pergamon Press, New York, 1985.
- (6) T. Takada, H. Miyake and Y. Tanaka, "Pulse Acoustic Technology for Measurement of Charge Distribution in Dielectric materials for Spacecraft", IEEE Trans. PS, Vol. 34, No. 5, pp.2176-2184 (2006)
- (7) Metrology of volume resistivity and solid electric insulating material-surface resistivity: JIS C 2139 and 2008