

陽子線照射フッ素系絶縁材料の正・負電圧印加時における空間電荷特性

千葉 潮*, 三好 雅仁, 三宅 弘晃, 田中 康寛 (東京都市大学)

Characteristics of Space Charge Accumulation in Fluoride Film Irradiated by a Proton under DC Stress

Ushio Chiba, Masahito Miyoshi, Hiroaki Miyake and Yasuhiro Tanaka (Tokyo City University)

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、プロトン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、プロトン照射下における絶縁材料の帯電計測を実施している。これまで、本研究グループでは荷電粒子照射下における内部帯電計測を可能にするため、パルス静電応力(Pulsed Electroacoustic : PEA)法を用いた放射線照射下で材料内の空間電荷分布の直接計測が可能な小型空間電荷測定装置を開発し、陽子線照射環境下におけるポリイミド材料の電荷蓄積特性を含む絶縁特性の評価を行ってきた。

本報告では、OSR やワイヤーハーネス等で用いられる ETFE(ethylene-tetrafluoroethylene) および FEP(fluorinated ethylene-propylene copolymer)における陽子線照射中の空間電荷分布計測、及び照射試料における直流荷電による絶縁特性の評価を行った。また、陽子線照射後の材料の構造変化等も検討する為、X 線光電子分光(X-ray photoelectron spectroscopy: XPS)測定を実施し、プロトン照射試料における帯電物性と材料構造との関連についても考察を行ったので以下に報告する。

2. 測定

2.1 パルス静電応力法による空間電荷測定原理

図 1 に PEA 法の原理図を示す。電極で挟んだ試料に時間幅 t_p がナノ秒のパルス電界を印加することにより、電荷蓄積位置において電荷量に比例した静電応力が t_p 秒間作用

し、電荷が蓄積している箇所が微小変位する。この微小変位により発生したパルス状圧力波が試料内、接地電極を伝搬し、圧電素子に到達して電圧信号に変換される。信号電伝搬の時間差により電荷分布を、信号強度から電荷量を得る事が出来る。圧電素子から出力される電圧信号はアンプで増幅され、オシロスコープで観測される。この電圧波形を伝達関数除去等の信号処理及び電荷量校正を施すことによって空間電荷分布を得ることができる⁽⁶⁾。

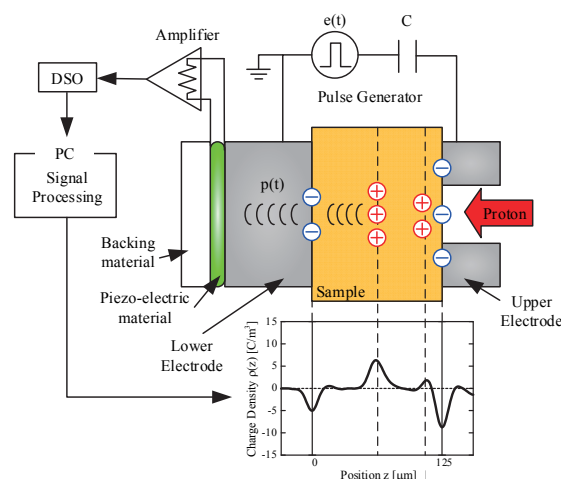


Fig.1 Principle of PEA method

2.2 空間電荷測定システム

図 2 に PEA 法を適用した空間電荷測定システムの概略図を示す。本システムは、空間電荷測定装置本体(以下センサユニット)、パルスジェネレータ、アンプ、アンプ用直流電源、デジタルストレージオシロスコープ、PC から構成され、空間電荷装置本体は真空チャンバー内に設置される。

センサユニットは荷電粒子を試料に照射するため、図 1 に示すように高電圧電極に照射口を設けており、放射線照射下での空間電荷分布計測を可能としている。また、装置のサイズは縦 40 mm、横 40 mm、高さ 37 mm と従来の空間電荷測定装置と比較し小型であり、小さなサイズのチャンバーにも対応できるようになっている。パルスジェネレータから $v_p = 120V$ 、 $t_p = 7 ns$ のパルス電圧を出力し試料に印加する。圧電素子は PVDF(厚さ 9 μm)を使用しており、装置の位置分解能は約 10 μm である。

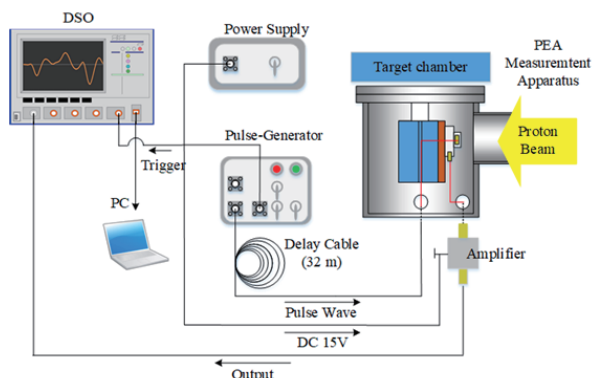


Fig.2 Schematic diagram of space charge measurement system for irradiation

3. 測定試料および実験条件

3.1 陽子線照射下における空間電荷計測

測定試料に照射面側に Al 蒸着を施した厚さ 100 μm の FEP を用いた。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所有の 3MV タンデム加速器を利用した。加速エネルギー 2.0 MeV、電流密度 30 nA/cm² の陽子を 30 分間照射し、その際の空間電荷分布を測定した。尚、陽子線照射は 1×10^{-5} Pa にて実施した。

3.2 陽子線照射 ETFE, FEP の直流課電時の空間電荷計測

測定試料として厚さ 100 μm の ETFE、FEP を用いた。加速エネルギー 1.5、2.0 MeV、電流密度 30 nA/cm² の陽子を測定試料に 30 分間照射し、照射 1 日および 365 日経過後の試料に直流課電をし、その際の空間電荷分布を常温大気圧下にて測定した。本測定に用いた空間電荷測定装置は、通常の空間電荷測定装置を用いた⁹⁾。直流課電は 25 ~ 100 kV/mm (25 kV/mm 毎) に相当する正及び負電圧を印加し、印加 30 分及びそれに引き続いての短絡 10 分間の空間電荷分布測定を行った。各測定における実験条件とその表記方法を表 1 に示す。表示名は「試料の頭文字(エネルギー, 日)」とし、照射 1 日、365 日後の 1.5 MeV 照射 FEP 及び FEP をそれぞれ $F_{(1.5,1)}$ 、 $E_{(1.5,1)}$ 、 $F_{(1.5,365)}$ 、 $E_{(1.5,365)}$ と表記する。以下同様に 2.0 MeV 照射試料においても $F_{(2.0,1)}$ 、 $E_{(2.0,1)}$ 、 $F_{(2.0,365)}$ 、 $E_{(2.0,365)}$ とする

Table.1 Measurement Condition

irradiation time	current density	energy	sample 1day		sample 365day	
			ETFE	FEP	ETFE	FEP
30 min	30 nA/cm ²	1.5 MeV	$E_{(1.5,1)}$	$F_{(1.5,1)}$	$E_{(1.5,365)}$	$F_{(1.5,365)}$
		2.0 MeV	$E_{(2.0,1)}$	$F_{(2.0,1)}$	$E_{(2.0,365)}$	$F_{(2.0,365)}$

4. 実験結果および考察

4.1 プロトン照射下における FEP 内のリアルタイム空間

図 3 にプロトン照射中・後の FEP 内空間電荷分布を示す。同図中、(a)においては照射開始照射開始直後(30 秒)、10、20、30 分後の空間電荷をそれぞれ黒、赤、青、緑で示しており、(b)においては照射終了直後(30 秒)、5、10 分後を

それぞれ黒、赤、青で示している。また、プロトンは同図電荷分布図の右側から照射し、陽子線の計算飛程を黒の破線で示している。

同図(a)より、照射直後から照射面から試料内約 45 μm の位置において正電荷の蓄積が確認され、照射 10 分後まで同じ位置において正電荷蓄積が 20 C/m³ まで増加し、電極表面には電極誘導負電荷が観測された。その後、正電荷の蓄積は計算飛程も超え、試料全体へ分布し蓄積されているのが確認された。

同図(b)より、照射終了直後から 5 分後まで電荷正蓄積は減少していくが、5 分から 10 分までは大きな減少は確認されなかった。また、照射中に最大電荷蓄積が観察された位置より照射面と反対側の電極面(図中左側)にかけて正電荷の蓄積が残存していることがわかる。このことから、陽子が侵入・通過した領域での材料の導電率の上昇が考えられる。

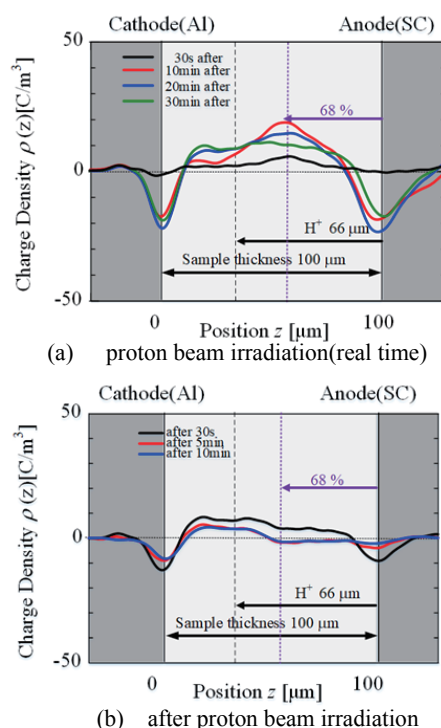


Fig.3 Space charge distribution in FEP during and after proton beam (2.0 MeV, 30 nA/cm²) irradiation

4.2.1 FEP における直流課電時の空間電荷分布

図 4 に陽子線照射 1 日及び 365 日後の FEP に直流課電した際の空間電荷分布を示す。なお、陽子線は同図空間電荷分布図の右側から照射した。

同図(a)(c)より、 $F_{(1.5,1)}$ と $F_{(1.5,365)}$ では正電圧印加時電圧上昇にともない徐々に試料内部に正電荷の蓄積が確認され、75 kV/mm 印加時から、それらの試料内正電荷が電極から注入していく様子も確認できる。1 日後の試料では計算飛程を超えて蓄積正電荷が移動していく様子が確認できるが、365 日後の試料では試料内の正電荷は計算飛程内に留まった状況と、照射後の緩和時間経過による差も確認できる。次に負電圧印加時であるが、同図(b)より $F_{(1.5,1)}$ の負電

圧時においては 75 kV/mm 印加時に絶縁破壊が生じた為、正電圧印加時との顕著な差を計測する事は出来なかったが、同図(d)の $F_{(1.5,365)}$ の負電圧時より、負極(照射面)側の電極面誘導電荷が観測されず、試料内の照射時における正電荷の最大蓄積位置と計算飛程との間に負電荷が観測された。あたかも電極が試料内に入り込んでしまったような状況となっている。

以上の正負電圧を印加した際の試料内の電荷挙動は 2.0 MeVs 照射時である、同図(e)~(f)でも同様の傾向が観察されている。

4.2.1 ETFE における直流課電時の空間電荷分布

図 5 に陽子線照射 1 日及び 365 日後の ETFE に直流課電

した際の空間電荷分布を示す。なお、陽子線は同図空間電荷分布図の右側から照射した。同図(a)(c)より、 $E_{(1.5,1)}$ と $E_{(1.5,365)}$ では正電圧印加時電圧上昇にともない徐々に試料内部の陽子線照射時の正電荷蓄積位置に正電荷の蓄積が確認された。同図(b)(d)より、負電圧印加時も同様に電圧上昇にともない試料内に負電荷の蓄積が観測された。この電荷の蓄積は陽子線照射時に形成される正電荷蓄積ではなく、高電圧を印加した際に高電圧電極側からの電荷の注入によるものと考えられる。また、同図(e)~(f)の $E_{(2.0,1)}$ と $E_{(2.0,365)}$ でも 1.5MeV 照射時と同様に、陽子線照射時の正電荷蓄積位置に電極から注入されたと思われる電荷蓄積が観測された。

以上の結果より、FEP、ETFE 共に陽子線照射により試料

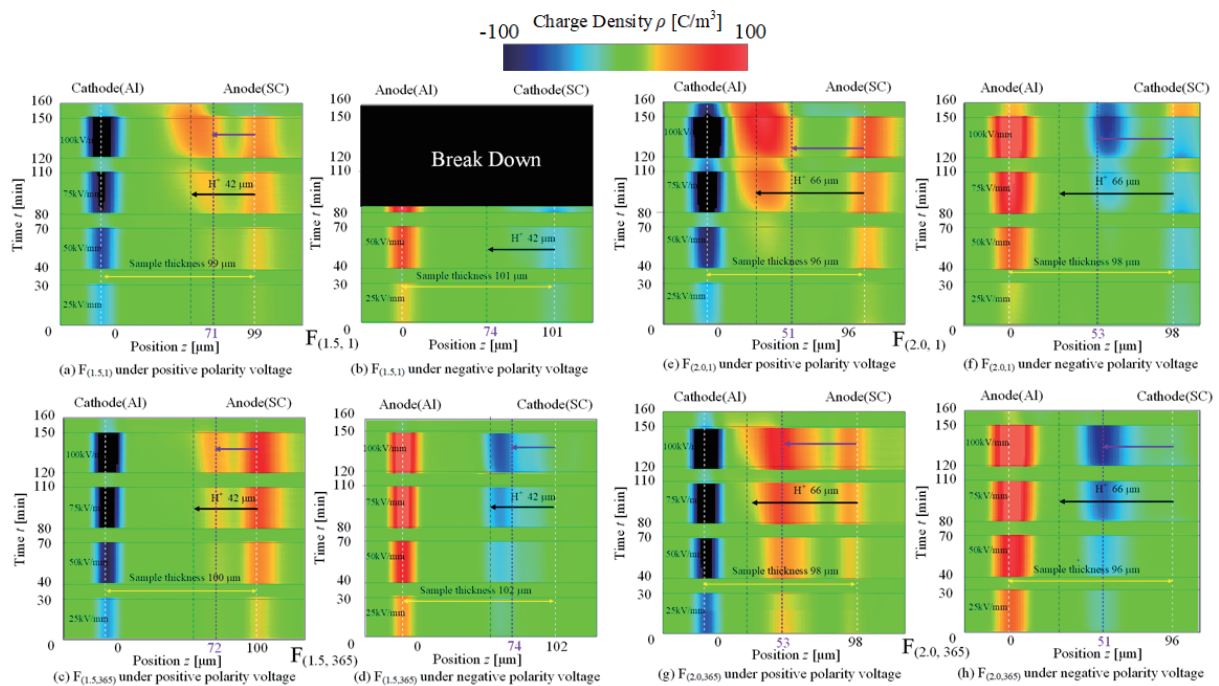


Fig.4 Space charge distribution in FEP under DC stress which are 1 day and 365 days after proton

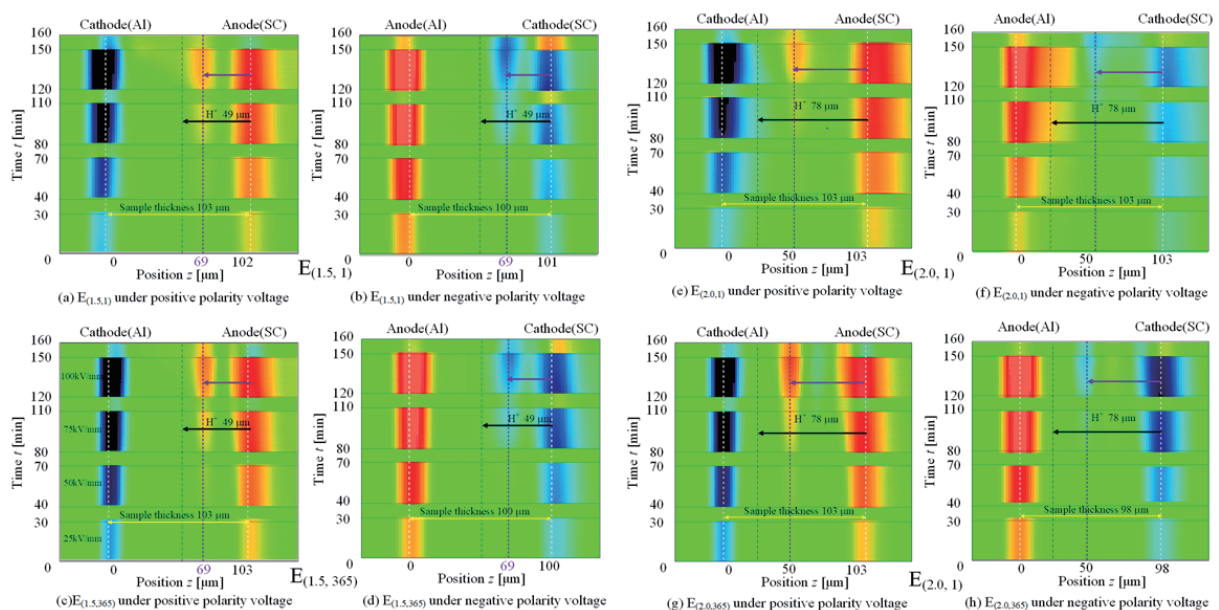


Fig.4 Space charge distribution in ETFE under DC stress which are 1 day and 365 days after proton

内部の照射領域における導電率が変化し、高電圧印加時に試料内部に電荷の注入が促進されたと考えられる。

5. XPS による陽子線試料の構造解析

前章までに、陽子線照射試料に高電圧印加した際に、未照射試料では観測されない電荷蓄積が観測され、照射 365 日後まで照射 1 日後の試料と同様の電荷分布が観測されることから、試料内に不可逆な構造変化が生じている事が推察される。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。試料測定試料には公称試料厚さ 50 μm の未照射及び陽子線照射 FEP を用い、照射終了後大気圧下において約 3 日経過した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、電流密度を 30 nA/cm^2 で 30 分間照射とした。照射はこの FEP を 2 枚積層した状態でを行い、上層および下層試料の照射面側の表面を用いて XPS 測定を実施した。尚、加速エネルギー 2.0 MeV で照射した際、上層の試料を貫通し、下層の試料表面より約 16 μm の位置が最大飛程試となる。照射試料においては上層試料で割れが生じている。

表 2 に FEP における XPS スペクトルを示す。1 列目に全体のスペクトル(0~1000eV)を、2 列目に C1s のスペクトルについて拡大したもの示している。また、1~3 行面にそれぞれ未照射、照射試料の上層、照射試料の下層のスペクトルを示している。縦軸は光電子数[counts]、横軸は結合エネルギー[eV]である。C1s スペクトルでは、ピーク分離処理を施し青線にて示している。またこのピーク分離処理の正確性を担保するため、分離したピークを合成し図中赤線で示している。

同表の C1s の拡大スペクトルより、未照射試料では主に C-C、CF₂、CF₃ のスペクトルが観測されたが、プロトン照射上層試料ではフッ素に関する結合ピークが減少し、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エーテル結合のピークが観測された。一方、プロトン照射下層試料ではエーテル結合の観測がされたが、フッ素や C-C に関する結合ピークの増減が上層試料に比べて少なく、未照射試料に類似したスペクトルが得られた。以上より、陽子線照射 FEP では陽子線の通過領域においては分子鎖切断、及び架橋が生じているものと推測される。また照射試料において検出されたエーテル結合については、試料の構成原子に酸素は無いため、照射後に大気圧下に試料を照射チャンバーから取り出した際に、試料がまだ活性状態にあり、その際にエーテル結合の生成が促進されたものと推察されるが、今後さらなる検討が必要である。

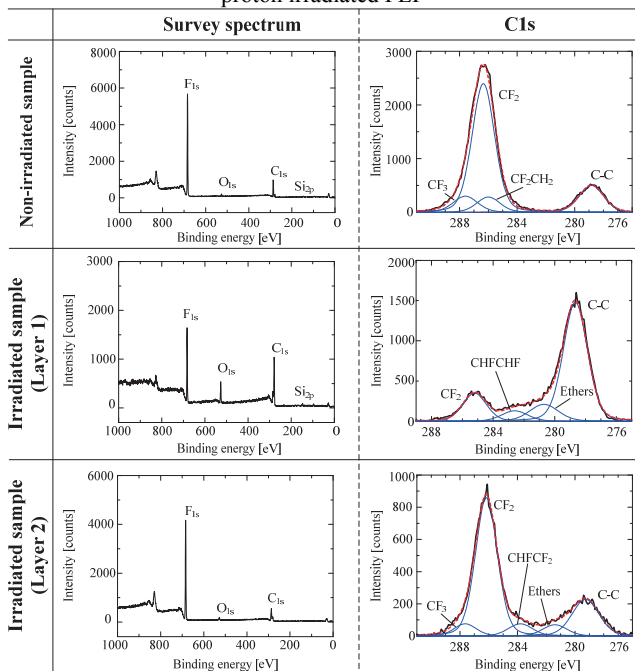
6. まとめ

陽子線照射によりフッ素系絶縁材料において恒久的な電気的特性の変化が生じた。これは、外部からの注入電荷による空間電荷蓄積と考えられる。また、XPS 解析を用いてプロトン照射によって照射試料のフッ素の欠落や架橋の発生し分子構造変化が変化した。今後の課題として、照射前後の試料

において導電率を図るための電流測定や空間電荷特性の再現性の取得等を行っていく予定である。

謝辞

Table 2 Comparison between XPS spectrum of non-irradiated and proton irradiated FEP



本研究の一部は科研費(JP15KK0216)、量子科学技術研究開発機構の施設共用制度の助成により行われた。

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, " Analysis of Electron Behavior in Polymeric Films During Electronic Irradiation ", 2005 Annual Report CEIDP, pp 645-648, 2005
- (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)Y. Li, et. al: Pulsed Electroacoustic Method for Measurement of Charge Accumulation in Solid Dielectrics, IEEE Trans. DEI, Vol.1, No.2, pp.188-195, 1994.