

プロトン照射したポリイミドフィルムの絶縁劣化特性の評価

内山龍*, 堀口皓平, 王振, 三宅弘晃, 田中康寛 (東京都市大学)

Evaluation for Insulation Degradation Properties in Proton Beam Irradiated Polyimide Films

Ryo Uchiyama, Kohei Horiguchi, Shin Ou, Hiroaki Miyake, Yasuhiro Tanaka (Tokyo City University),

ABSTRACT

The spacecraft like a communication or a broadcasting satellite flying in GEO (Geostationary Orbit) is always exposed to plasma and/or radioactive-rays such as α -, β -, and γ -rays. When the insulating materials, in which the spacecraft is wrapped to keep temperature in it stable, are irradiated by the high energy proton beam, sometimes an unexpected accident due to an electrostatic discharge occurs. However, it has not known how the irradiation affects to change of the electrical properties of the materials. In our previous research work, we especially focused on an internal charging phenomenon which must affect to the electrical properties of irradiated polyimide for spacecraft. Judging from the measurement results, it is found that a positive charge accumulates in polyimide rapidly up to a certain saturated value, then it gradually decreases even during the proton beam irradiation. As the reason for the phenomenon, we consider the generation of RIC (Radiation Induced Conductivity). In this paper, we tried to measure the space charge distribution and conduction current under DC stress of 100 kV/mm in proton beam irradiated different type of Polyimides to figure out the mechanism of RIC.

キーワード：宇宙機，絶縁材料，プロトン照射，ポリイミド，空間電荷，導電率

(Key words: Spacecraft, Insulating material, Proton beam irradiation, Polyimide, Space charge, Conductivity)

1. はじめに

人工衛星などの宇宙機は、温度変化の激しい宇宙環境において、機内の温度を一定に保つために、絶縁材料フィルムを積層した MLI (Multilayer Insulator) と呼ばれる熱制御材料が使用されている。しかし、MLI は高エネルギー荷電粒子や放射線、プラズマ環境下などに曝されることによって、帯電・放電現象が発生し、絶縁材料の劣化や宇宙機に搭載されている機器の誤作動・故障を引き起こすといわれている [1]-[2]。特に宇宙環境に起因する静止衛星の事故のうち、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 などに使用される絶縁材料等の帯電状況に影響を及ぼす。そのため、絶縁特性の評価が重要となってくる。しかし、現在検討されている宇宙機設計のガイドラインでは高エネルギー荷電粒子が照射された絶縁フィルムの絶縁特性があまり考慮されていない。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っている。

これまで当研究グループでは、MLI として実際に用いられるポリイミド高分子絶縁材料に着目し、パルス静電応力法 (Pulsed Electro-acoustic Method: PEA 法) を用いた内部帯電計測装置により、高エネルギープロトン照射中における試料の内部帯電計測を行ってきた。その結果、蓄積総電荷量がプロトン照射中に減少する傾向が確認され、その原因としてプロトン照射による放射線誘起伝導

度 (Radiation Induced Conductivity: RIC) が影響していると考えた [3]。そこで本論文では PEA 法、および ASTM 法 (American Society for Testing and materials method) [4] を用いてプロトンが照射されたポリイミドを用いて空間電荷分布測定、導電率測定を行うことで、プロトン照射によるポリイミドの絶縁劣化特性について調査していく。

2. 測定原理

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 (厚み方向) で静電応力が瞬間的に発生し、試料に蓄積している電荷が微小変位する。これにより、圧力波が発生する。圧力波は下部電極を伝搬してセンサー (圧電素子) に到達し、電気信号に変換される。圧電素子から出力された電圧信号を信号処理することによって空間電荷分布を得る。なお、圧力波は試料内の電荷が蓄積するそれぞれの位置から発生するため、圧電素子に到達するまでに時間差が生じる。これが出力信号の時間差として検出されるので、試料内の空間電荷の位置情報を得ることができる。さらに、発生する圧力波の振幅は電荷密度に比例するため、電荷密度に比例した電気信号を得ることができる [5]-[6]。

2-2. ASTM 法の原理

図 2 に ASTM 法の原理図を示す。試料を電極で挟み、試料に直流電界を印加することにより、試料中を通過してきた漏れ電流 $I[A]$ が検出電極に出力される。出力された漏れ

電流をピコ・アンメーターで計測し、漏れ電流を電極面積で除することで電流密度 J [A/m^2] を求め、更に印加電界 E [V/m] で除することによって(1)式に示す導電率 κ [S/m] を算出することができる。

$$\kappa = J / E \tag{1}$$

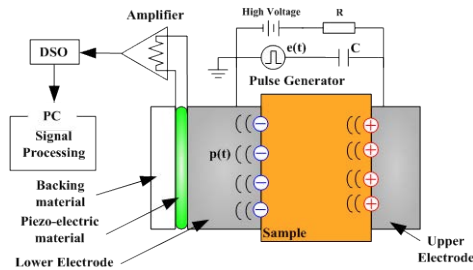


図 1 PEA 法の測定原理

Fig. 1 Principle of the PEA method

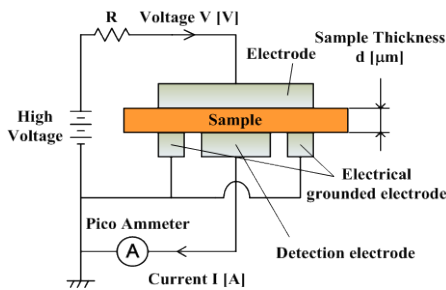


図 2 ASTM 法の測定原理

Fig. 2 Principle of the ASTM method

3. 測定試料および実験条件

図 3 に測定に使用した試料の分子構造を示す。測定試料には、厚さ 50 μm の分子構造が異なる 2 種類のポリイミドフィルムを用いた。本論文では、それらの試料を PA (PI type A) と PB (PI type B) として表すことにする。

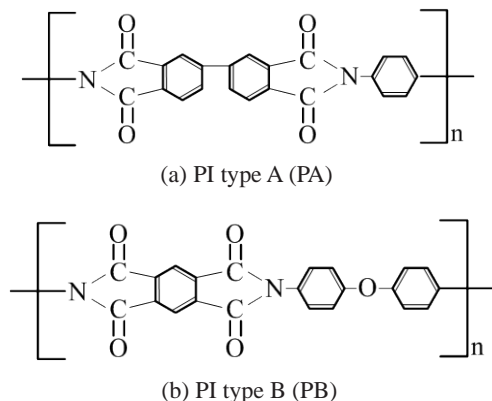


図 3 各ポリイミドフィルムの分子構造

Fig. 3 Chemical structures of polyimide films

PEA 法、および ASTM 法を用いて直流電界下における未照射・プロトン照射試料の空間電荷分布測定、伝導電流測定を行った。照射したプロトンの加速エネルギーは 1.0 - 2.5 MeV であり、電流密度を 30 nA/cm^2 一定として真空度 1.0×10^{-5} Pa の真空チャンバー内で 30 分間照射し、大気圧下において約 1 日経過後に直流電界 100 kV/mm を印加し、その際の試料内空間電荷分布測定、および電流密度の経時変化を観測した。表 1 に加速エネルギー毎の試料名を示す。測定結果では、表 1 の試料名を用いて解説を行う。測定時間は空間電荷測定では印加 120 分、短絡 10 分の計 130 分間(測定間隔 10 秒)行い、電流測定では印加 180 分間(測定間隔 2.5 秒)行った。また、PA に関しては照射後の導電率の緩和過程を調査するため、プロトンの加速エネルギー 1.5、2.0 MeV、電流密度 30 nA/cm^2 お一定として真空チャンバー内で 30 分間照射し、大気圧下において 1 - 15 日経過した試料に直流電界 100 kV/mm を印加し、その際の電流密度の経時変化を観測した。測定時間は印加 120 分間(測定間隔 2.5 秒)行った。なお、プロトン照射には日本原子力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て行った。

表 1 加速エネルギー毎の試料名

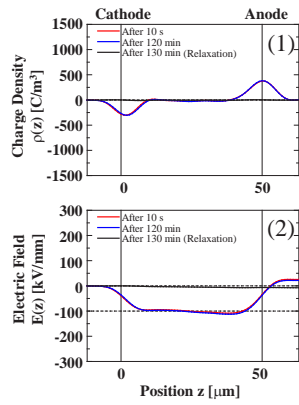
Table. 1 Naming table of the irradiated samples

Sample name	Material	Acceleration energy
PA0	PA	未照射
PA10		1.0 MeV
PA15		1.5 MeV
PA20		2.0 MeV
PA25		2.5 MeV
PB0	PB	未照射
PB10		1.0 MeV
PB15		1.5 MeV
PB20		2.0 MeV
PB25		2.5 MeV

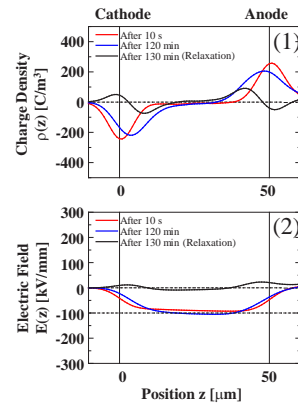
4. 実験結果および考察

4-1. プロトン照射したポリイミドフィルムの直流高電界下における空間電荷分布測定

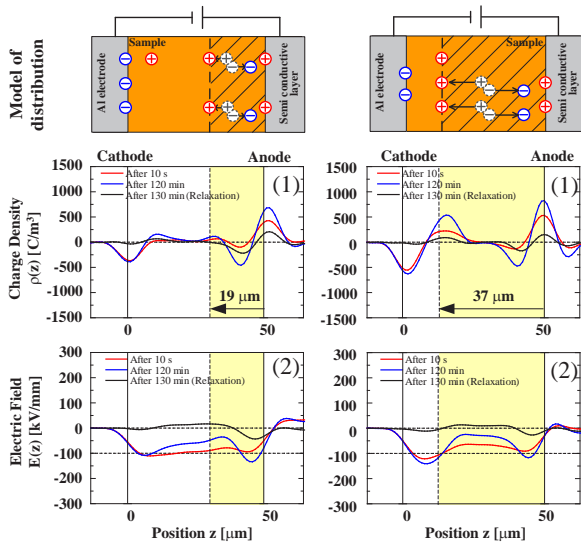
図 4, 5 に直流電界下における PA, PB の(1)空間電荷分布、(2)電界分布波形、および空間電荷モデル図を示す。同図中 (a)には未照射試料を、(b) - (e)にはそれぞれ加速エネルギー 1.0 - 2.5 MeV のプロトン照射試料の測定結果である。図中赤線、青線は印加開始 10 秒後、120 分後、黒線は短絡 10 分後をそれぞれ表している。また、同図(b) - (e)中の縦の破線は SRIM によって算出したプロトンの最大飛程を示している[7]。加速エネルギー 1.0、1.5 MeV の場合、プロトンの飛程は 19, 37 μm であり、試料内に蓄積させる条件である。加速エネルギー 2.0、2.5 MeV の場合、プロトンの飛程は 59, 84 μm であり、試料を十分に貫通している。



(a) Nonirradiated sample (PA0)

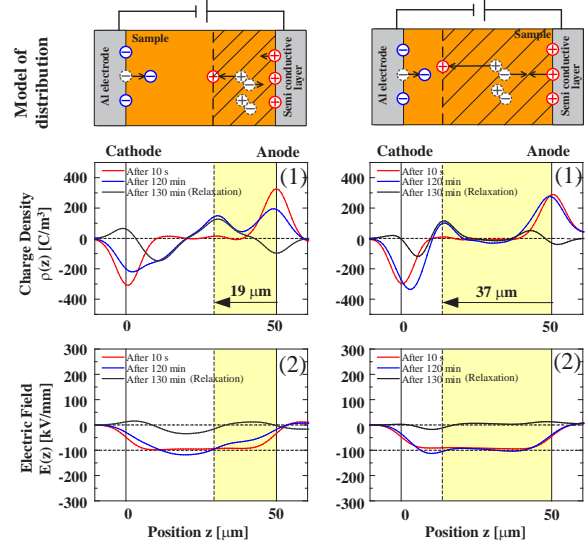


(a) Nonirradiated sample (PB0)



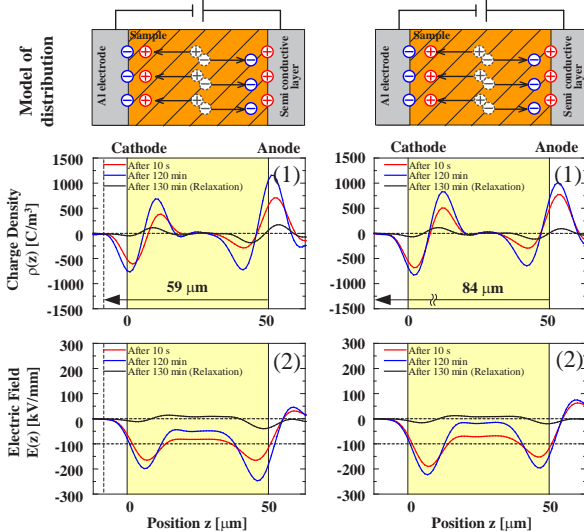
(b) 1.0 MeV (PA10)

(c) 1.5 MeV (PA15)



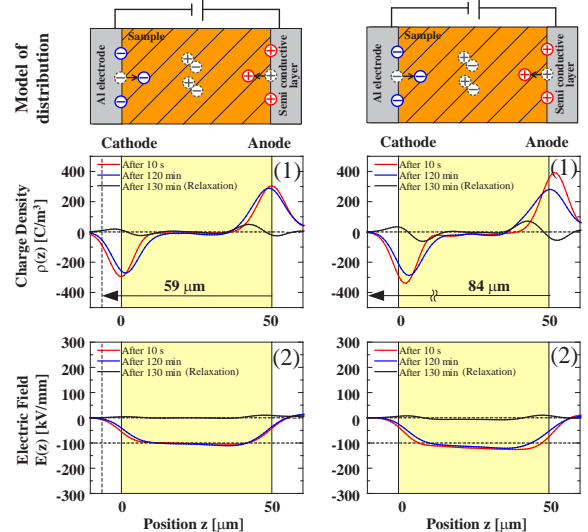
(b) 1.0 MeV (PB10)

(c) 1.5 MeV (PB15)



(d) 2.0 MeV (PA20)

(e) 2.5 MeV (PA25)



(d) 2.0 MeV (PB20)

(e) 2.5 MeV (PB25)

図4 直流電界 100 kV/mm 印加時における PA の空間電荷・電界分布波形

Fig.4 Space charge and electric field distributions in PA under DC average stress of 100 kV/mm
1) Space charge distribution 2) Electric field distribution

図5 直流電界 100 kV/mm 印加時における PB の空間電荷・電界分布波形

Fig.5 Space charge and electric field distributions in PB under DC average stress of 100 kV/mm
1) Space charge distribution 2) Electric field distribution

図 4(1-a)より、PA0 では電界印加による顕著な空間電荷の蓄積は確認できない。また、電界分布も 100 kV/mm 一定である。図 4(1-b)より PA10 の場合、電界印加 10 秒後に微量の正・負電荷の蓄積が見られ、印加 120 分後には最大飛程、および陰極付近に正電荷、陽極に負電荷の蓄積がそれぞれ観測された。また、図 4(1-b)より、電界は 1.3 倍の増加が観測された。図 4(1-c)より PA15 の場合、印加開始直後に最大飛程、および陽極付近に正・負電荷の蓄積が観測された。また、図 4(1-c)より、電界は 1.5 倍の増加が観測された。図 4(1-d), (1-e)より PA20, PA25 では、印加開始直後に陰極付近、および陽極付近に正・負電荷の蓄積が観測された。また、図 4(2-d), (2-e)より、電界は 2.5 倍の増加が観測された。

次に図 5(1-a)より、PB0 では短絡 10 分後の測定結果より、陰極、および陽極付近に微量の正・負電荷の蓄積が観測された。これは、電界印加による電極からの注入電荷であると考えられる。図 5(1-b), (1-c)より、PB10, PB15 の場合、最大飛程に正電荷の蓄積が観測された。また、陰極付近には負電荷の蓄積が未照射領域に観測されていることから、負電荷の蓄積は電極からの注入電荷であることがわかる。また、図 5(2-b), (2-c)より、電界は 1.2, 1.1 倍の増加が観測された。一方、図 5(1-d), (1-e)より、PB20, PB25 では、未照射試料同様、陰極、および陽極付近に正・負電荷の蓄積が見られた。

4-2. プロトン照射したポリイミドフィルムの直流高電界下における伝導電流測定

図 6, 7 に直流電界下における PA, PB の電流密度の経時変化、導電率算出結果を示す。また、図 7 は図 6 における電流密度の 180 分値を用いて算出した。図 6(a)で加速エネルギー 1.5, 2.0 MeV で照射した場合には電界印加中に絶縁破壊が生じたため、導電率は絶縁破壊直前における電流密度を用いた。なお、図 6 の縦軸は電流密度、横軸は時間を示し、図 7 の縦軸は導電率、横軸はプロトンを照射した際の加速エネルギーを表しており、加速エネルギー 0 MeV 時のプロットは未照射試料における導電率を示している。また、加速エネルギー毎の導電率の 2-3 個のプロットはそれぞれの測定回数を示している。

図 6 (a)より、PA0 は電界印加直後に最大値に上昇後、その後印加時間の経過に伴い電流密度は 8.0 nA/m^2 まで減衰した。一方、プロトン照射試料では全ての照射条件において、電流量の増加が観測された。また PA15, PA20 では、電流密度はそれぞれ 1.0×10^3 , $1.0 \times 10^4 \text{ nA/m}^2$ まで減衰した後、電界印加 80, 30 分後に上昇を始め、 2.0×10^4 , $2.0 \times 10^5 \text{ nA/m}^2$ に達した際に絶縁破壊に至った。また、図 7 より、未照射試料の導電率 $1.0 \times 10^{-16} \text{ S/m}$ と比較すると、照射試料はそれぞれ 4.0×10^{-16} , 2.0×10^{-13} , 2.0×10^{-12} , $3.0 \times 10^{-14} \text{ S/m}$ であり約 4, 2000, 20000, 300 倍であった。したがって、導電率はプロトンの加速エネルギーに依存して増加したが、PA25 では、導

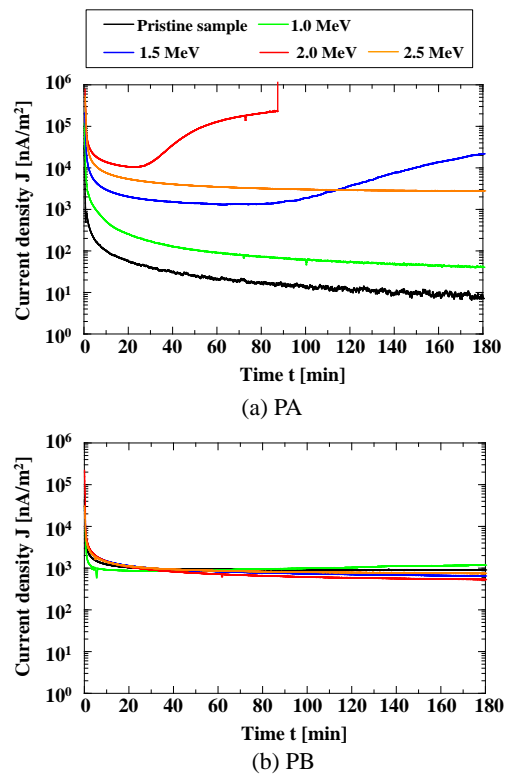


図 6 直流電界 100 kV/mm 印加時における電流密度の経時変化

Fig. 6 Time dependence of the current density under a DC stress of 100 kV/mm

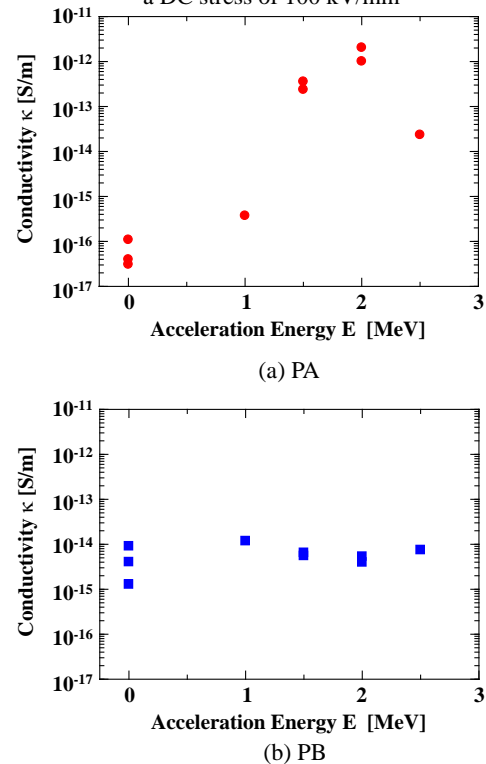


図 7 各加速エネルギーの導電率算出結果
Fig. 7 The electrical conductivity in acceleration energy

電率の減少が見られた。これは、2.5 MeV では試料を十分貫通させたことによる線エネルギー付与の影響であることが考えられる。一方、図6(b)、図7よりPBの場合、プロトン照射による電流密度、および導電率の顕著な変化は観測されなかった。

これらの結果より、PAにおいてはPA0とは異なり、電界印加により、顕著な正・負の空間電荷分極が生じ、更に導電率は最大 10^4 倍の上昇、および絶縁破壊が観測された。一方、PBにおいてはプロトンを試料内に蓄積させた場合では、正電荷の蓄積のみが試料内に観測され、貫通させた場合では、未照射試料同様に顕著な空間電荷の蓄積は観測されなかった。また、導電率も空間電荷蓄積同様、顕著な変化は確認できなかった。このことから、同じポリイミドフィルムでも分子構造が異なることで、プロトン照射の影響が異なると考えられる。PAにおいては照射前後で試料内部の電気的特性が顕著に変化したと考えられる。高エネルギーのプロトンが分子鎖を切断することで、正・負のキャリアが多量に発生したまま材料内部に残留し、それが直流高電界下で分離し、空間電荷分極が発生したと考えられる。また、この分極電荷は電界印加直後から発生しており、試料内の導電率も高くなっていると予想でき、電流計測による導電率の結果からも、それが裏付けられていることがわかる。したがって、PAに関しては、プロトン照射により、絶縁特性が劣化していると言える。一方、PBに関しては、図5(2-d)、(2-e)より、プロトン照射によるキャリアの生成がない、あるいは極めて少ないと考えられることから、空間電荷蓄積、および導電率に変化が観測されなかったと考えられる。

4-3. プロトン照射したポリイミドフィルムの照射後における導電率の経時変化

高分子絶縁材料に荷電粒子照射後において、導電率が上昇する現象として遅延放射線誘起伝導(Delayed Radiation Induced Conductivity: DRIC)が挙げられる。しかし、その現象は照射後の経過時間によって減少することが報告されている[8]-[9]。そこで、プロトン照射後の経過時間と導電率の関係を調査するため、プロトン照射後における導電率の経時変化を観測した。図8、9に未照射試料、および加速エネルギー1.5、2.0 MeVのプロトンを照射し、大気圧下において1-15日経過したPAの直流電界下における電流密度の経時変化、および導電率算出結果を示す。また、図9は図8における電流密度の120分値を用いて算出した。図8で照射後1日経過した試料の場合では電界印加中に絶縁破壊が生じたため、導電率は絶縁破壊直前における電流密度を用いた。

図8(a)よりPA15の場合、照射後1, 2, 6, 15日経過することで電界印加による電流密度の上昇は減少した。また、電界印加中における電流密度の上昇、および絶縁破壊は照射

後1日経過した試料でのみ観測された。図8(b)よりPA20もPA15同様、照射後1, 2, 3, 5, 15日経過することで電界印加による電流密度の上昇は減少した。また、電界印加中における電流密度の上昇、および絶縁破壊は照射後1日経過した試料でのみ観測された。また、図9より照射試料の導電率はPA15の場合、 4.0×10^{-13} , 2.0×10^{-15} , 5.0×10^{-16} , 3.0×10^{-16} S/m、PA20の場合、 4.0×10^{-16} , 6.0×10^{-15} , 1.0×10^{-15} , 6.0×10^{-16} , 3.0×10^{-16} S/mであり、照射試料の導電率は照射後の時間経過によって、未照射試料の導電率 1.6×10^{-16} S/m まで減衰することが確認された。

以上より、PAのプロトン照射による導電率の上昇は時間経過に依存して減衰したことから、絶縁劣化特性は照射後の時間経過により、絶縁特性が回復することがわかった。

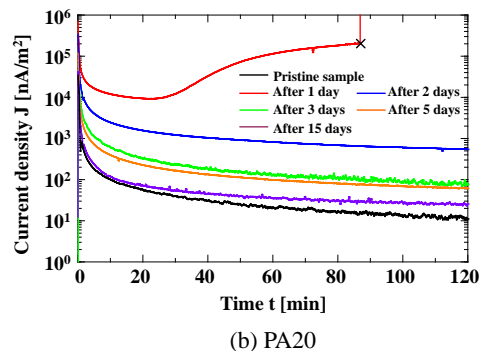
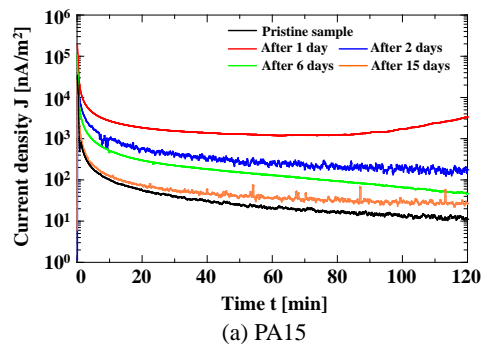


図8 直流電界 100 kV/mm 印加時における電流密度の経時変化

Fig. 8 Time dependence of the current density under a DC stress of 100 kV/mm

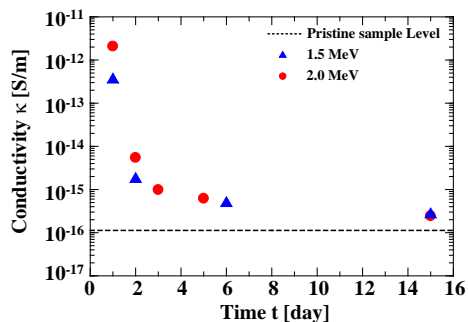


図9 導電率の経時変化

Fig. 9 Time dependence of the electrical conductivity

5. まとめ

異なる分子構造を持つポリイミドフィルムを用いてプロトン照射実験を行った結果、プロトン照射による空間電荷蓄積特性、および RIC の影響が異なることがわかった。また、プロトン照射による RIC の影響は、空間電荷分布測定、および導電率測定から、高エネルギーのプロトン照射によって生じたキャリアの発生が影響していることがわかった。また、PA の RIC の増加は照射後の時間経過に依存して減少することがわかった。

6. 今後の予定

PA, PB におけるキャリア生成の有無、導電率の上昇を試料の分子構造の観点から解析を行っていく。

謝辞

本研究は科学研究費補助金(No. 23760292)、及び日本原子力研究開発機構の施設供用制度により実施された。

文 献

- [1] 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] D. Payan, R. Reulet, B. Dirassen, "Electrostatic behavior of dielectrics under GEO-like charging space environment simulated in laboratory", 9th Spacecraft Charging Technology Conference, Proceeding, Tsukuba (Japan), 4-9 April 2005.
- [3] Yang, G.M.; Sessler, G.M., "Radiation-induced conductivity in electron-beam irradiated insulating polymer films" Electrical Insulation, IEEE Transactions on, Vol. 27, Issue 4, pp.843-848, 1992
- [4] Metrology of volume resistivity and solid electric insulating material-surface resistivity: JIS C 2139 and 2008
- [5] Y.Li, M. Yasuda and T. Takada.: "Pulsed Electroacoustic Method for Measurement of Charge Accumulation in Solid Dielectrics", Transactions on DEI, Vol.1, No.2, pp.188-195, 1994.
- [6] T. Takada, H. Miyake, and Y. 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
- [7] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, "The Stopping and Range of Ions in Solids", Pergamon Press, New York, 1985
- [8] L. Levy, T. Paulmier, B. Dirassen, C. Inguibert, and M. V. Eesbeek, "Aging and Prompt Effects on Space Material Properties", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 36, No.5, pp.2228-2237, 2008.
- [9] N. W. Green and J. R. Dennison, "Deep Dielectric Charging of Spacecraft Polymers by Energetic Protons", IEEE

Transactions on Plasma Science, Vol. 36, No.5, pp.2482-2490, 2008.