

令和 元年 6 月 28 日現在

機関番号：32678

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化）

研究期間：2016～2018

課題番号：15KK0216

研究課題名（和文）放射線環境における帯電・線量計測用超高感度半導体サブナノセンサの開発（国際共同研究強化）

研究課題名（英文）Development of ultra-sensitive semiconductor sub-nanosensor for charging and radiation absorption dose measurement in radiation environment(Fostering Joint International Research)

研究代表者

三宅 弘晃 (Miyake, Hiroaki)

東京都市大学・工学部・教授

研究者番号：60421864

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 8,100,000円

渡航期間：13ヶ月

研究成果の概要（和文）：本研究ではより高機能な次世代の衛星設計のために、電子物性の観点に立った衛星材料の帯電・放電現象の解明する為、パルス静電応力法（PEA法）による空間電荷分布計測、二次電子・光電子放出計測、量子化学計算、及び物性計測手法であるFTIRやPL(Photo Luminescence)などの計測結果を用いて総合的に帯電物性の解析を仏・LAPLACEと共同で実施した。その結果、陽子線照射材料内に蓄積・構成された正電荷蓄積は、材料の分子鎖の切断、および架橋反応により生成されたものであることが理解された。さらにこれらを軌道上実証するために、衛星搭載用帯電計測器のBBMを開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、まず陽子線が照射された材料の電荷蓄積分布、及び電気物性を明らかにすることが出来た。またこれらの電荷挙動が陽子線を照射された材料の構造変化に起因するものである事も理解できた。また、衛星搭載用の帯電計測器の基礎が構築できた為、今後の軌道上実証への道が開かれた。以上より地上試験と軌道上での実測結果を比較する事により、実環境での帯電を電子物性の観点から理解を進めることが出来るため、今後の高機能衛星の高信頼化につながる。

研究成果の概要（英文）：In this study, following measurement and calculation were carried out for the purpose of understanding charge and discharge phenomena of satellite materials from the viewpoint of electronic properties for design of the next generation satellite with higher reliability. Those works were also carried out with LAPLACE, France."Space charge measurement by pulsed electroacoustic (PEA) method, FTIR, PL (Photo Luminescence), Secondary electron and Photoemission measurement, Quantum chemical calculation"

As a result, it was understood that the positive charge accumulation in the fluorinated material irradiated by a proton was generated by scission and crosslinking reaction of molecular chains of the material due to irradiation.

Furthermore, in order to demonstrate in orbit charging measurement, we developed BBM, a spaceborne electrification instrument.

研究分野：計測工学

キーワード：帯電計測 軌道上実証 陽子線照射 宇宙環境計測

## 様式 F-19-2

### 1. 研究開始当初の背景

近年、人工衛星は社会で必須のインフラとなっている。世界を見ても、GPSや地球観測などを目的としたインフラ衛星の打ち上げが立て込んでいる。今後は複数衛星の同時運用による機能を拡張して運用させるコンステレーション衛星が多数利用される傾向にある。また、衛星の電力需要は増加しており、JAXAや航空宇宙工業会の調査では、現状最大20 kWから25~30 kWにここ10年程度で増加することが見込まれている。またエネルギー基本計画(H26/4/11閣議決定)では、宇宙太陽光発電を将来の革新的技術と位置づけており、産学コンソーシアムでは2040年を目指してMWクラスの太陽光発電衛星の実用化を目指しており、これらの衛星の基幹電圧がより高電圧となり衛星の帯電が大きく問題になる状況にある。これまでの衛星の軌道上での運用異常は、その半数以上が放射線による帯放電に起因しており、安定運用の為に人工衛星材料の帯電物性を把握し、衛星の設計段階から帯電対策を盛り込むことが求められている。現在、宇宙機帯電評価は表材料の電子物性まで考慮した設計を行っていない。ISOなどの衛星設計標準などでも、同様の状況である。また、軌道上での帯電計測はほとんど実施されておらず、帯電障害の運用指針すら際状況である。しかしながら、衛星が社会インフラとして必須なものとなっており、かつ、大災害等の安全保障を担うシステムの根幹を担う様になりつつある状況では、さらなる高信頼化が求められており、それを実現するためには衛星材料の物性や宇宙環境とのインタラクションを盛り込んだ高度な衛星設計手法が必要となる。

### 2. 研究の目的

実現する為には、現在実施している半導体圧力波センサを開発する科学研究課題を基に、衛星に用いられる絶縁材料の電子物性や宇宙環境計測・モデルを統合した設計手法を確立して行く事が必須である。よって、本申請の最終到達目標を「社会基盤の高信頼化に資する次世代型人工衛星の革新的帯電設計評価手法の確立」と設定した。

### 3. 研究の方法

本課題を遂行するため、以下の4項目の課題を設定した。研究概念図を図1に示す。

- ① PEA法を用いた衛星搭載用帯電計測器BBMの開発及び放射線照射環境下での帯電計測試験
- ② EL・PL等物理学分析と空間電荷測定による材料物性の解析
- ③ 二次電子・光電子測定による表面帯電物性の解析
- ④ 材料帯電挙動シミュレーションの構築

①により、帯電計測法として電気絶縁分野で標準的計測法である当研究室で開発されたパルス静電応力(pulsed electroacoustic: PEA)法に、科研費基盤(C)で開発している半導体圧力波センサの導入を図る。また、衛星搭載用帯電計測装置の研究室試作(Breadboard model: BBM)の開発も実施する。②, ③は帯電物性を実験的に明らかにするものであり、これらを基に④帯電物性モデルを作成する事により放射線が照射された材料表面・内部での電荷挙動の解析を行う。

④では衛星帯電の基となる電子・陽子や放射線量などの宇宙環境について、これまでに日本とフランスで軌道上試験により蓄積した宇宙環境計測結果を解析する事により、帯電に起因する宇宙環境因子の同定を図るものである。

また⑤に関しては、①で開発し帯電計測器を実際に衛星に搭載し軌道上での実測を目指す。軌道上の帯電計測結果と③で構築した帯電モデルの比較検証を行う。全ての項目を実施することにより実験的・解析的に帯電物性を明らかにし、革新的な帯電設計評価手法を確立することでき、高信頼性を有した次世代型の衛星開発が可能となる。本申請では①~④を主として実施した。尚、本報告書では①と②に焦点を絞り報告をする。

### 4. 研究成果

(1) PEAを用いた衛星搭載用帯電計測器BBMの開発及び放射線照射環境下での帯電計測試験

図1に示すよう帯電計測器を開発し、陽子線を照射中に帯電計測試験を行った。照射施設には量子科学技術研究開発機構 高

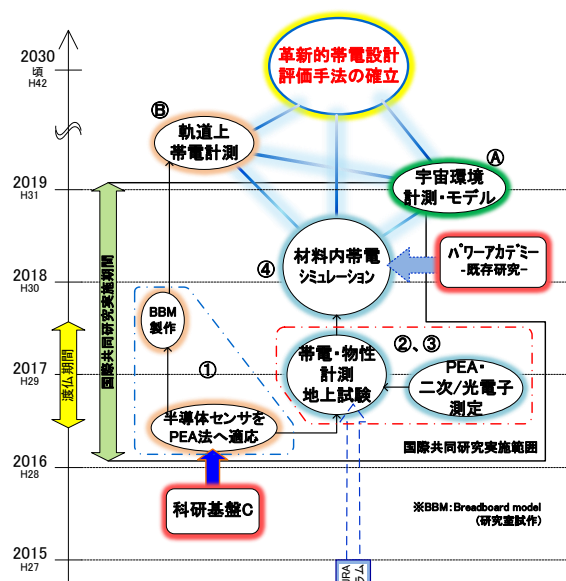
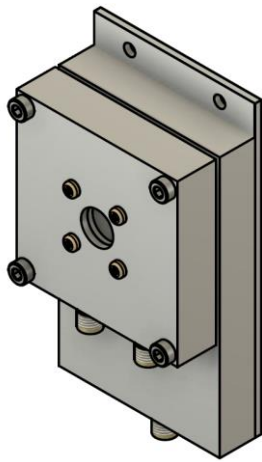
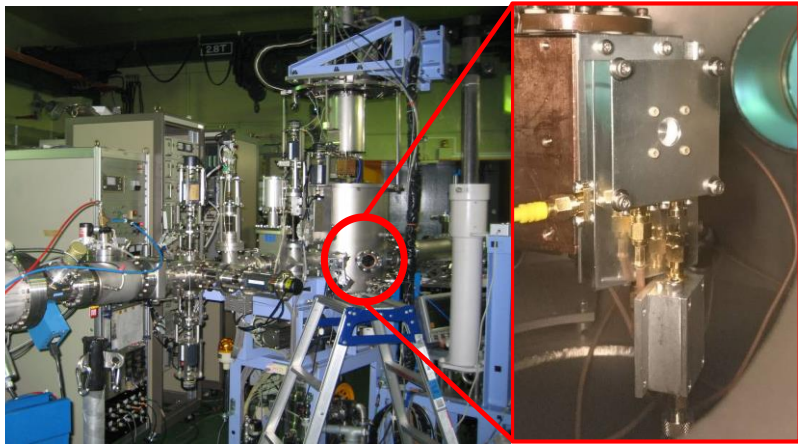


図1. 本研究プロジェクト概念図



(a) 装置外観



(b) 照射試験における装置設置状況

図 2. 開発した帯電計測器 BBM 及び陽子線照射チャンバ設置状況

崎量子応用研究所の 3MV タンデム加速器を用いた。照射チャンバに図 2 に示すように設置し、陽子線照射中・後のポリマー材料の帯電計測を連続的に行い、BBM の動作試験及び陽子線照射中の材料内の帯電挙動を計測した。

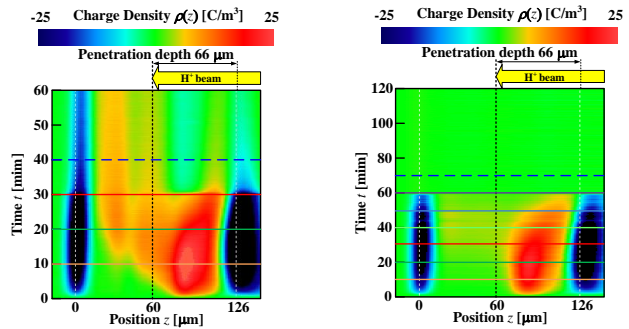
① 照射試料および実験条件

測定試料にSheldahl社製の公称試料厚さ 125  $\mu\text{m}$  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2に本試験で用いたPEA法を用いた衛星搭載用のBBMでは、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  $\text{nA}/\text{cm}^2$  とした。照射時間は15、30  $\text{nA}/\text{cm}^2$  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。

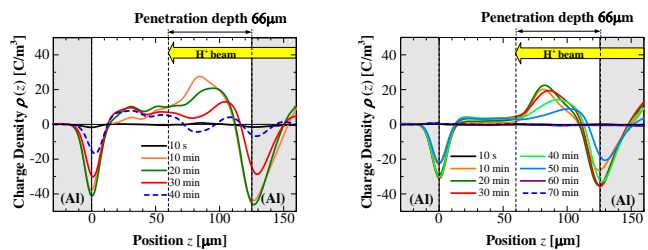
② 陽子線照射中の FEP 内正電荷挙動

図 3(A)に 30  $\text{nA}/\text{cm}^2$ 、(B)に 15  $\text{nA}/\text{cm}^2$  照射時の FEP における測定結果を示す。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)に同図(a)における 10 分毎の照射開始直後から照射終了 10 分後までの 10 分毎の空間電荷分布波形(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  $\mu\text{m}$ )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、同図(a)の横実線と破線と対応している。

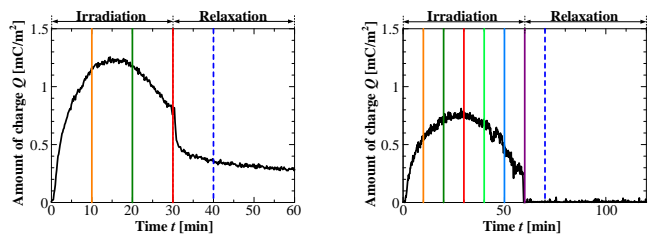
同図(a),(b)より、両条件において正電荷蓄積量は照射中に最大となり、その後照射時間の経過とともに減少している。同図(c)からも、蓄積正電荷量は 30、15  $\text{nA}/\text{cm}^2$  照射時においてそれぞれ照射開始後 14、28 分で飽和し、その後減少していく事が分かる。また



(a) Time dependence of charge density charge distribution under proton beam irradiation and relaxation



(b) Charge distribution under proton beam irradiation and relaxation



(c) Total amount of charge accumulation in the bulk of sample with irradiation and relaxation time progress

(A) 30  $\text{nA}/\text{cm}^2$ , 30 min (B) 15  $\text{nA}/\text{cm}^2$ , 60 min

図 3 陽子線照射中の FEP 内における空間電荷蓄積分布及び試料内の総電荷量の経時変化

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(図中青色の破線)、30 nA/cm<sup>2</sup> 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<sup>2</sup> 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ことから、30 nA/cm<sup>2</sup> 照射時の結果との差も観察された。

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。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。陽子線照射時間の経過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蓄積電荷が中和されピーク位置の変化や蓄積正電荷量の減少が生じたと考えられる。RIC の発生の一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うと分子構造によっては試料が放射化する場合があり、照射直後には本試料も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。以上より、RIC や分子鎖切断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<sup>2</sup> 照射時においては照射後の電荷残留が確認されなかった点については、他研究用の照射済み試料作製のため、試料のみへの照射試験を実施した際に、照射状況を監視するモニタ上にて試料表面で放電の発生が確認された。このため放電をトリガとした蓄積電荷の放出が生じた可能性があると考えられるが、空間電荷蓄積挙動の再現性取得や放電計測の定量評価なども含めて、詳細は今後の照射試験によって明らかにしていく予定である。

以上より、今回の BBM 内のセンサには開発中の半導体圧力波センサの感度上の問題でポリマー製の圧電素子を用いたが、本研究で開発した BBM について有用性を示せた。本帯電計測については、現在科学衛星の帯電計測器として搭載検討を進めおり、軌道上での帯電実測を想定より早い段階で進められる可能性があり、今後も本帯電計測器の搭載に力を尽くしていく。

## (2) EL・PL 等物理学分析と空間電荷測定による材料物性の解析

### ① 陽子線照射材料における DC 課電下の空間電荷蓄積挙動

陽子線照射 ETFE 及び FEP の直流課電下の空間電荷分布を図 4 に示す。全ての結果は当研究室で構築した PEA 法による空間電荷分布測定装置によって取得された。測定は陽子線照射後からおよそ 1 日後に大気圧・室温下(約 25°C)で行われた。空間電荷測定は平均電界 100kV/mm 印加環境下で 120 分、その後短絡状態で 20 分実施された。図中では、赤線が印加直後 5 秒後の結果を、青線が印加 120 分後の結果を、オレンジと緑の破線がそれぞれ短絡直後及び短絡 20 分後を示している。照射面が図中右側に来るように試料を設置している。また図中の黒の縦線は SRIM による陽子線の計算飛程を示している。尚、比較の為、未照射試料の測定結果も同図中(a)に示しているが、この場合は印加・短絡時間をそれぞれ 60 分、10 分と設定した。

同図(a)より、未照射試料においては、100kV/mm という高電界を印加しても、ETFE、FEP 両試料において、印加中に試料内への電荷注入は生じていないことが分る。

加速エネルギー 1.5 MeV 照射試料では、同図(b)より、ETFE・FEP ともに試料内に正電荷蓄積が確認できる。しかしながら、電荷蓄積の状況は ETFE と FEP において少し異なっている。ETFE においては陽子線の飛程近傍に正電荷が蓄積するのみならず、負電荷が陰極側から飛程

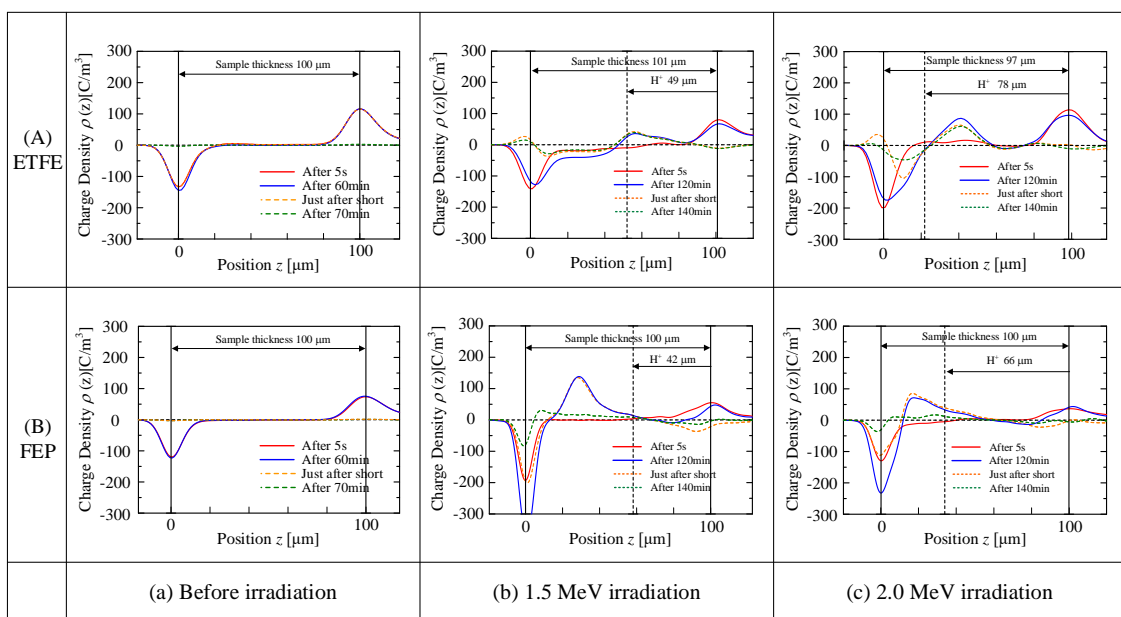


図 4 直流 100 kV/mm 課電下の陽子線照射/未照射 ETFE 及び FEP の空間電荷分布

近傍まで注入されている。また FEP においては、正電荷の蓄積位置が照射面から約 70 $\mu\text{m}$  と飛程より深い位置に観察された。加速エネルギー 2.0 MeV 照射試料においても試料内には正電荷の蓄積が確認された。蓄積位置がより深い位置になるものと、1.5 MeV と同様の傾向が観察された。

## ②物理化学分析(PL 及び FTIR)による測定結果

図 5 に陽子線未照射・照射 FEP 及び ETFE の PL 測定結果を示す。照射試料として加速エネルギー 1.5 MeV で照射したものをを用いた。本測定では励起光として 200 ~ 300 nm の範囲の波長を用いているが、一番変化が大きかった 285 nm の測定結果のみを示している。同図より、未照射 FEP・ETFE では 300 及び 550 ~ 600 nm で観察されたが、照射 FEP・ETFE 試料では中心波長がそれぞれ 400 と 450 nm の幅の広いピークが観測された。さらに照射 ETFE では、未照射時に観測された 300 nm の波長は完全に消失している事が確認され、550 ~ 600 nm の波長は先に述べた 450 nm を中心とする幅の広いピークに埋没している。この照射試料にて観測された幅広いピークは、陽子線照射による分子鎖の切断により新たな局在準位が幅広いエネルギー帯に形成されたことにより、生じたものと考えられる。

図 6 に未照射と加速エネルギー 1.5 MeV 照射 ETFE の FTIR 測定結果を示す。同図の結果は、全ての測定を通して、変化量が最も少なかった波数である 1040  $\text{cm}^{-1}$  の値で規格化している。また各波数における分子振動モードを表 1 に示す。照射後の試料において、2831 - 2997  $\text{cm}^{-1}$ 、1605 - 1807  $\text{cm}^{-1}$  間に新しいピークの形成が確認された。一方、669 と 509  $\text{cm}^{-1}$  のピークは減少し、 $\text{CF}_2$ 、C-C 及び C-O の分子に起因する 972 - 1425  $\text{cm}^{-1}$  の波数においては、広がりを持った増加をしている。以上の結果から、照射により分子鎖の切断が生じ、切断された不安定状態の C が照射された陽子線と結合したものと推測される。さらに切断によって生じた不安定 C は、C の二重結合や C-O や C-C も生成するものと推察される。

$\text{CF}_2$  の振動モードについては、増加と減少の 2 つの現象が確認された。通常 PTFE は C と F 原子によって形成されており、放射線照射後の材料は切断タイプの現象が支配的である。一方 PE は C と H 原子によって構成されており、こちらは放射線照射によって架橋タイプの現象が支配的とされている。ETFE は  $\text{PE}(\text{CH}_2)$  と  $\text{PTFE}(\text{CF}_2)$  によって構成されている材料であるため、陽子線照射により分子鎖切断と架橋の双方の現象が現れたものと推察される。それ故に、分子鎖切断によって 669 と 509  $\text{cm}^{-1}$  が減少したものと考えられる。さらには、陽子線照射によって  $\text{CH}_2$  と  $\text{CF}_2$  の振動モードが変化した為、分子鎖切断によって 972 - 1425  $\text{cm}^{-1}$  間のピークの広域化及び増加が観察されたものと考えられる。

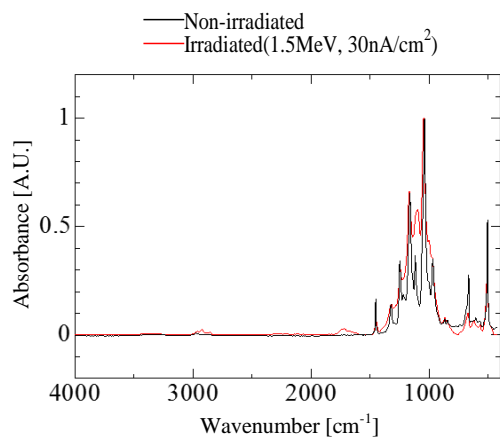


図 5 陽子線照射・未照射 ETFE における FT-IR 測定結果

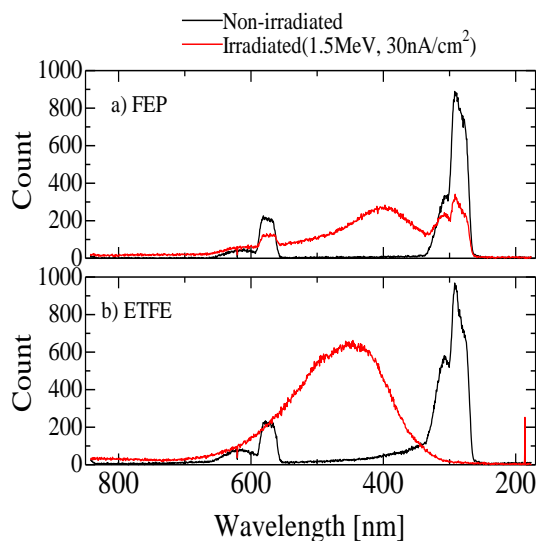


図 6 285 nm の励起光における陽子線照射・未照射 FEP/ETFE の PL 測定結果

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

- (1) 永瀬 崇浩, 吉田 周吾, 森 琢磨, 三宅 弘晃, 土方 規実雄, 田中 康寛, 電子線照射したフッ素系絶縁材料の直流課電下における空間電荷蓄積特性, 電気学会論文誌 A, 査読有, Vol. 138, No. 4, pp. 163-170, 2018 年
- (2) 吉田 周吾, 永瀬 崇浩, 岩間 健太, 三宅 弘晃, 田中 康寛, 電子線照射フッ素系絶縁材料中の電子正孔対生成量の解析, 電気学会論文誌 A, 査読有, Vol. 137, No. 11, pp. 632-638, 2017 年
- (3) Hiroaki Miyake, Yasuhiro Tanaka, Charge Distribution in Polymethyl Methacrylate and Quartz Glass Irradiated by Protons, Sensors and Materials, 査読有, Vol. 29, No. 8, pp.1213-1222, 2017

〔学会発表〕（計 7件）

- (1) H. Miyake, V. Griseri, U. Chiba, K. Enoki, Y. Tanaka and G. Teysse, Analysis of Charge Accumulation Phenomena by Physicochemical Analysis for fluorinated Polymer Films Irradiated by Proton, Proceedings of the 15th Spacecraft Charging Technology Conference (SCTC2018), 2018,
- (2) Hiroaki Miyake, Virginie Griseri, Takuma Mori, Yasuhiro Tanaka, Gilbert Teysse and Christian Laurent, Physicochemical Analysis for fluorinated Polymer Films Irradiated by Proton, 2017 The Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), 2017
- (3) Hiroaki Miyake, Shugo Yoshida, Takuma Mori, Ushio Chiba, Yasuhiro Tanaka, Space charge accumulation behavior in fluorinated Polymer Films Irradiated by Proton under DC stress, 2017 The Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), 2017
- (4) Shugo Yoshida, Kenta Iwama, Hiroaki Miyake, Yasuhiro Tanaka, Analysis of the relationship between amount of electron-hole pairs and relaxation time after electron beam irradiation in polymeric sample, 2017 The Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), 2017
- (5) Masahito Miyoshi, Kimio Hijikata, Hiroaki Miyake and Yasuhiro Tanaka, Charge Accumulation Characteristics of Fluorine Insulating Materials under Electron Beam Irradiation, 8th International Symposium on Electrical Insulating Materials(ISEIM 2017), 2017
- (6) M. Miyoshi, K. Hijikata, H. Miyake, Y. Tanaka, The relationship between accumulated charge in electron beam irradiated fluorine insulating materials, 31th International Symposium on Space Technology and Science (ISTS), 2017
- (7) K. Suzuki, H. Miyake, Y. Tanaka, T. Okumura, S. Kawakita, M. Takahashi, K. Koga, Relationship between Electron Beam Irradiation Dose and Photoelectron Emission Characteristics of Electron Beam Irradiated Insulating Materials, 31th International Symposium on Space Technology and Science (ISTS), 2017

## 6. 研究組織

研究協力者

〔主たる渡航先の主たる海外共同研究者〕

研究協力者氏名：バージニー グリズリ

ローマ字氏名：Virginie Griseri

所属研究機関名：ポールサバティエ大学・CNRS 附置研究所 プラズマ及びエネルギー変換工学研究所(LAPLACE)

部局名：同研究所

職名：准教授

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。