

平成22年4月7日現在

研究種目：基盤研究(C)
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19560786
 研究課題名（和文）低軌道環境における原子状酸素・紫外線誘起コンタミネーションの
 脱離・付着特性解析
 研究課題名（英文）Adsorption and desorption properties of atomic oxygen-induced
 and vacuum ultraviolet-induced contaminations in low earth orbit
 研究代表者
 横田 久美子 (YOKOTA KUMIKO)
 神戸大学・大学院工学研究科・助手
 研究者番号：20252794

研究成果の概要（和文）：本研究では、神戸大学現有のレーザーデトネーション型原子状酸素発生装置を用いて、原子状酸素および真空紫外線による宇宙用熱制御材料からの分子コンタミネーション脱離・付着に関する現象を物理化学的側面から明らかにすることを目標とし、反応生成物の脱離および付着特性を温度制御型水晶振動子マイクロバランス等により高精度解析したものである。本研究の結果、(1) 原子状酸素および真空紫外線を単独照射した場合には、ポリイミド、フッ素系ポリマーいずれにおいても質量は減少、すなわち分子コンタミネーションが発生すること、(2) フッ素系ポリマーでは原子状酸素と真空紫外線を同時照射した場合の分子コンタミネーション発生量は、それぞれの単独照射時の単純和となり相乗効果は観察されないこと、(3) フッ素系ポリマーでの分子コンタミネーション発生量は原子状酸素の平均衝突エネルギーの増加とともに指数関数的に増大すること、(4) ターゲットポリイミド材料の温度が100℃では原子状酸素照射による反応物脱離量が増大する事等が明らかになった。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to clarify the desorption and adsorption phenomena of the molecular contaminations from spacecraft thermal control materials exposed to atomic oxygen and vacuum ultraviolet from the physicochemical point of view. The desorption and adsorption properties of the reaction products in various atomic oxygen exposure conditions were analyzed by using the temperature-controlled quartz crystal microbalance. The following results were obtained: (1) Molecular contaminations from the fluorinated polymer and polyimide were generated by atomic oxygen and vacuum ultraviolet exposure alone, (2) A synergistic effect of on the simultaneous exposure of atomic oxygen and vacuum ultraviolet from a fluorinated polymer was not observed, (3) The amount of molecular contamination from a fluorinated polymer increased exponentially with increasing of the average collision energy of atomic oxygen, (4) The reaction products (contamination) from polyimide during atomic oxygen exposure increased at higher temperature.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2008年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・航空宇宙工学

キーワード：航空宇宙システム・設計，宇宙環境誘起コンタミネーション

1. 研究開始当初の背景

宇宙機の表面には熱制御材としてポリイミドあるいはFEP テフロンを使ったMLIが広範に用いられている。しかしながら、これらの材料表面は低地球軌道(LEO)では原子状酸素や紫外線、あるいはこれらの同時照射効果(シナジー)により、急速に劣化してゆくことが知られている。これらの高分子表面の劣化はMLIの赤外線リフレクタンスやエミッシビティを変化させ、熱制御材としての機能を低下させる。これが原子状酸素誘起材料劣化現象であり、低軌道宇宙環境科学の分野で重要な問題とされている。原子状酸素や紫外線との反応により生成された低分子量フラグメントは材料表面から脱離し、温度等の条件によっては隣接する光学部品表面に堆積する。近年、このような分子コンタミネーションが光路中に堆積すると衛星搭載光学機器の性能を著しく低下させ、科学衛星等ではミッション全体の寿命を左右するクリティカルな要因になりうる事が指摘されている。

これまでのコンタミネーションコントロールは、真空中でアウトガスの少ない材料を選択することで行われてきた。しかし、この方法では宇宙環境において生じる材料自身の変質や劣化の影響は考慮されていない。宇宙用熱制御材として広く使用されているポリイミドをはじめとする炭素系高分子材料は低地球軌道環境の主な大気成分である原子状酸素や太陽紫外線およびこれらの複合効果によって激しく劣化することから、このような高分子の原子状酸素誘起劣化は質量減少を伴う。すなわち、気化性反応生成物の形成と材料表面から脱離が生じており、これらがアウトガスと同様の分子コンタミネーション源となる可能性がある。

そこで、本研究では宇宙環境による材料劣化がコンタミネーションコントロールにおよぼす影響に着目して、原子状酸素および紫外線によって宇宙用高分子材料から誘起された脱離物の再付着特性について地上模擬実験において評価を行った。

2. 研究の目的

本研究では、申請者らが所有するレーザーデトネーション型原子状酸素発生装置と

温度制御型水晶振動子マイクロバランス(TQCM)、さらに極端紫外線除去用高速チョッパーを組み合わせて、低地球軌道環境において高分子材料から発生する

- ① 原子状酸素誘起分子フラグメント脱離
- ② 紫外線誘起分子フラグメント脱離
- ③ 原子状酸素・紫外線複合誘起分子フラグメント脱離

について、それぞれの「高分子表面からの脱離プロセス」、および「ターゲット表面への付着プロセス」について高精度観測することを目的とした。

3. 研究の方法

実験には神戸大学現有のレーザーデトネーション型原子状酸素発生装置に、紫外線源として172nmエキシマ光を取り付けた宇宙環境模擬試験装置を使用した。本装置では原子状酸素生成過程で酸素プラズマが発生する際に副生成物として極端紫外線(EUV)が発生するが、その影響を除去するために高速ACモーターを用いた高速回転チョッパーの取り付けを行った(図1)。これにより、原子状酸素ビームとEUVを切り分けることができ、さらに原子状酸素ビームの並進エネルギー分布を狭域化することが可能となった。本システムに対し、原子状酸素軸と90°の方向から真空紫外線(エキシマランプ)を照射し、サンプルを回転させることにより原子状酸素と真空紫外線の相対強度を可変した。

試料としてはTQCMのクリスタル上にスピン

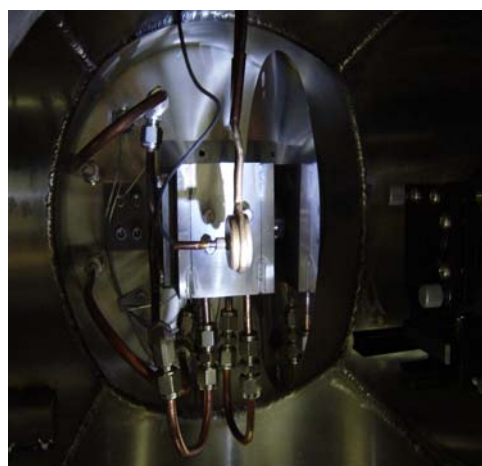


図1 EUV除去とエネルギー分布狭域化のために取り付けられたACモーターと高速回転チョッパー

コートしたポリイミド薄膜および低エネルギープラズマアシスト真空蒸着を行ったフ

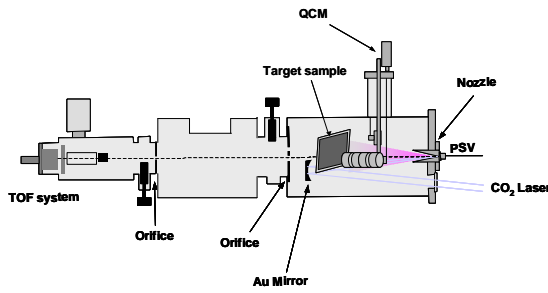


図 2 分子コンタミネーション測定システムを装着したレーザーデトネーション型原子状酸素発生装置

ッ素系高分子薄膜を用いて、MLI に広範に用いられているポリイミドおよび紫外線に敏感な材料であるフッ素系ポリマーに対する原子状酸素および真空紫外線の影響を、分子コンタミネーション発生量という観点から検討した。

これらの試料に対して原子状酸素および紫外線照射を行い、照射中の TQCM の共振周波数変化により材料の質量変化を求め、コンタミネーション発生量を測定した。また、高速紫外線回転チョッパーを使用することにより原子状酸素の並進エネルギー分布を切り分けて、原子状酸素の平均並進エネルギーによる分子コンタミネーション発生量の变化を計測した。

また、ターゲット材料からの脱離物の付着特性を明らかにするために図 2 に示すように、レーザーデトネーション型原子状酸素発生装置のメインチャンバー内に 60 W フィルムヒーターを内蔵した Cu 製ターゲットホルダーを原子状酸素照射軸に対して 45° 方向に装着した。ターゲット材料 (Kapton-H, 膜厚 125 μm) から発生した原子状酸素誘起脱離物の付着特性を温度可変型 Au-QCM を設置して計測した。なお、ターゲット材料からの脱離物以外の付着物を防ぐために Au-QCM には長さ 50 mm のフードを取り付け視野を制限した。また、Au-QCM の温度は 0 °C に設定して実験を行った。

4. 研究成果

図 3 にフッ素系ポリマーに原子状酸素 (5.4eV) および紫外線を照射したときのコンタミネーション発生率 (材料の質量減少率) を測定した結果を示す。横軸は原子状酸素および紫外線の入射角度を、縦軸は QCM の周波数変化すなわち試料の質量変化を表し

ている。同時照射した場合のエロージョンレ

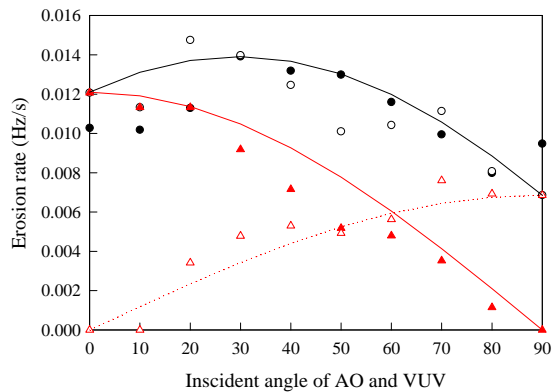


図 3 原子状酸素および真空紫外線照射によるフッ素系ポリマーの質量変化率

トを●で、各々単独照射した場合の原子状酸素によるエロージョンレート (▲) と紫外線によるエロージョンレート (△) の単純和を○で示している。原子状酸素正対時におけるエロージョンの原子状酸素の入射角に対する余弦(有効照射量)を赤の実線、紫外線正対時におけるエロージョンの原子状酸素の入射角に対する正弦(有効照射量)を赤の破線、それらの和を黒の実線で示している。原子状酸素、紫外線単独照射による質量減少 (コンタミネーション発生) が確認されているが、同時照射した場合の効果について、フッ素系ポリマーにおけるコンタミネーション発生量は、それぞれの有効照射量の単純和に比例するという結果が得られ、相乗効果は発現しないことが確認された。

図4に原子状酸素照射によるポリイミドおよびフッ素系ポリマーのエロージョンレート(コンタミネーション発生量率)の原子状酸素並進エネルギー依存性についての結果を示す。ポリイミドではエネルギーの増加とともにエロージョンレートはリニアに増加しているが(●)、フッ素系ポリマーでは平均並進エネルギーが

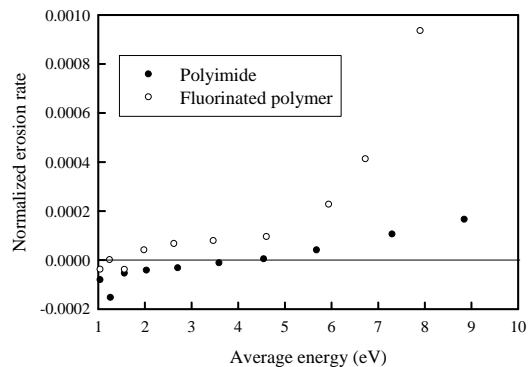


図 4 ポリイミドおよびフッ素系ポリマーの原子状酸素によるエロージョンレートの原子状酸素平均並進エネルギー依存性

6eV以上から指数関数的に急激な増加を示した (○)。このことから、フッ素系ポリマーにおけるコンタミネーション発生には原子

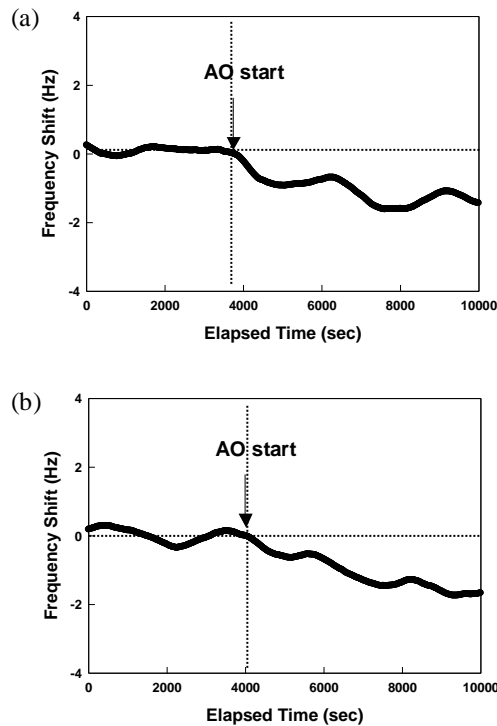


図5 Kapton-H からの分子フラグメント付着による Au-QCM の周波数変化 (a) Kapton-H Target 温度 : 25 °C (b) 100 °C

状酸素の化学的な反応性よりも衝突エネルギーによる影響が強いことが明らかになった。

図5にはAu-QCMへのコンタミネーション付着特性を示している。ターゲット材料としてはKapton-H フィルムを使用した。ターゲット材料の温度を25, 100 °Cに設定し、QCMの温度を0 °C固定として原子状酸素照射中のAu-QCMの共振周波数の変化を測定した。また、バックグラウンドとしてターゲットのKapton-H フィルムを装着せずにターゲット基板材料のCuのみで温度100 °Cのデータを採取した。図5の横軸は時間を、縦軸はAu-QCMの共振周波数をしている。図5より原子状酸素照射後に質量が増加していることから、原子状酸素によるターゲットからの誘起脱離物質がAu-QCMに付着したことが確認された。100 °Cに比べて25 °Cでは付着量が少なく、高温であるほど原子状酸素によるKapton-Hからの分子状の脱離物が発生しやすいことが確認された。Au-QCM 感度 : 20 ng/Hz、Kapton-H 密度 : 1.42g/cm³、Au-QCM 直径 : 7 mm の各値を用いて、Au-QCM上への付着量を算出

した。付着した分子コンタミネーションの膜厚をKapton-H の密度を用いて算出した結果を表

表1 Au-QCM に付着したコンタミネーション厚さ (Kapton-H 換算)

Kapton-H Temp (°C)	Thickness of Contamination (nm)
25	0.5
100	0.7

1に示す。表1より、ターゲット温度が100 °Cにおけるコンタミネーション厚さは0.7 nmであった。温度の低い25°Cでは付着量が減少しており、低温ではKapton-Hの分子フラグメントが脱離するためのエネルギーが小さいため、ターゲットからの脱離量が少なかったものと考えられる。軟X線やEUV光学機器では数nmの分子コンタミネーションの付着によって光学系部品の性能が低下することから、長期間軌道上で観測衛星では影響を受ける可能性があると考えられ、宇宙環境による材料劣化現象に起因する分子フラグメントの脱離と再付着はミッションクリティカルになり得る重要な要因であることが明らかになった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計6件)

1. “Hydrogen desorption from a diamond-like carbon film by hyperthermal atomic oxygen exposures”, Kumiko Yokota, Masahito Tagawa, Akira Kitamura, Koji Matsumoto, Akitaka Yoshigoe, Yuden Teraoka, Applied Surface Science, 査読有, Vol.255 No.13-14 (2009) 6710-6714.
2. “Si-doping for the of hydrogenated diamond-like carbon films in a simulated atomic oxygen environment in LEO protection”, Kumiko Yokota, Masahito Tagawa, Akira Kitamura, Koji Matsumoto, Akitaka Yoshigoe, Yuden Teraoka, Julien Fontaine, Michel Belin, Space Technology Japan, 査読有, Vol.7 (2009) pp. Pc_37-Pc_42.
3. “Issues and consequences of space environmental effect on materials”, Masahito Tagawa, Kumiko Yokota, Space Technology Japan, 査読有, Vol.7 (2009) pp. Tr_2_21- Tr_2_26.

4. “Atomic layer fluorination of highly oriented pyrolytic graphite using hyperthermal atomic fluorine beam”, Masahito Tagawa, Kumiko Yokota, Ken-ichi Maeda, Akitaka Yoshigoe, Yuden Teraoka, Applied Physics Express, 査読有, Vol.2, No.6 (2009) 066002.

5. “Atomic oxygen-induced polymer degradation phenomena in simulated LEO space environments: How do polymers react in a complicated space environment?”, Masahito Tagawa, Kumiko Yokota, Acta Astronautica, 査読有, Vol.62 (2008) 203-211.

6. Masahito Tagawa, Shingo Abe, Kazuhiro Kishida, Kumiko Yokota, Akio Okamoto, “Synergistic effect of EUV from the laser-sustained oxygen plasma in the ground-based atomic oxygen simulation of fluorinated polymers”, Protection of Materials and Structures from the LEO Space Environment, AIP Conference Proceedings 1087, 査読有, pp. 170-184.

[学会発表] (計 20 件)

1. 横田久美子、田川雅人、松本康司、神田一浩、古山雄一, “高水素化DLC膜への真空紫外線照射効果”, 第 57 回応用物理学関係連合講演会, 2010 年 3 月 17 日-3 月 20 日 (平塚)

2. K. Kanda, K. Yokota, M. Tagawa, M. Tode, Y. Teraoka, S. Matsui, “Departure Process of Hydrogen from Highly-Hydrogenated Diamond-Like Carbon Film by Exposure to Synchrotron Radiation”, 第 5 回JAEA放射光科学シンポジウム、佐用、2010.02.25-02.26,

3. 田川雅人、横田久美子、島村宏之、木本雄吾、古賀麻由子、西村博明, “炭酸ガスレーザー励起酸素プラズマからの極端紫外線分光”, 第 50 回真空に関する連合講演会 2009 年 11 月 4 日-11 月 6 日 (東京)

4. 横田久美子、田川雅人、松本康司、神田一浩、北村晃、高水素化DLCフィルムへの紫外線照射による脱水素化反応、第 50 回真空に関する連合講演会 2009 年 11 月 4 日-11 月 6 日 (東京)

5. 田川雅人、横田久美子, “地上設備を用いた低軌道原子状酸素環境試験：本当に宇宙環境を模擬できているのか?”, 日本熱物性学会 2009 年 10 月 28 日-10 月 30 日 (米沢)

6. 横田久美子、田川雅人, “低軌道におけるテフロン系熱制御材の劣化機構：原子状酸素、紫外線、それとも?”, 日本熱物性学会 2009 年 10 月 28 日-10 月 30 日 (米沢)

7. Kumiko Yokota, Kazuhiro Kishida, Akio Okamoto, Masahito Tagawa, “Combined effect of atomic oxygen and vacuum ultraviolet from deuterium lamp on the erosion of polymeric materials”, Proceedings of the 11th International Symposium on Materials in Space Environment, Aix-en-Provence, September 14-18, 2009,

8. Masahito Tagawa, Kumiko Yokota, Kazuhiro Kishida, Akio Okamoto, “Origins of the accelerated erosion of fluorinated polymer in a laser-detonation ground-based atomic oxygen facility”, Proceedings of the 11th International Symposium on Materials in Space Environment, Aix-en-Provence, September 14-18, 2009,

9. Kazuhiro Kishida, Kumiko Yokota, Akio Okamoto, Masahito Tagawa, “Energy dependence on fluorinated polymer erosion by hyperthermal atomic oxygen exposures: a high-speed chopper and quartz crystal microbalance study”, The 27th International Symposium on Space Technology and Science, Tsukuba, Japan, 2009.07.05-07.12,

10. Kumiko Yokota, Masahito Tagawa, “Erosion properties of PMDA-ODA polyimide as a reference material for atomic oxygen fluence monitoring”, The 27th International Symposium on Space Technology and Science, Tsukuba, Japan, 2009.07.05-07.12,

11. 横田久美子、岸田和博、岡本昭夫、田川雅人, “フッ素系高分子のエッチングに及ぼす酸素原子衝突エネルギーの効果”, 第 70 回応用物理学学会学術講演会, 2009 年 9 月 8 日-9 月 11 日 (富山)

12. 横田久美子、岸田和博、田川雅人、岡本昭夫，“フッ素系高分子材料の劣化に及ぼす原子状酸素と極端紫外線の複合効果”，第 69 回応用物理学学会学術講演会，2008 年 9 月 2 日-9 月 5 日（春日井）

13. 岸田和博、田川雅人、横田久美子，“模擬複合宇宙環境地上試験におけるフッ素系ポリマーのシナジー効果”，第 45 回日本航空宇宙学会中部・関西支部合同秋季大会，2008 年 11 月 28 日（名古屋）。

14. 田川雅人、岸田和博、横田久美子，“原子状酸素誘起ポリイミド質量減少における衝突エネルギーの効果”，第 52 回宇宙科学技術連合講演会アブストラクト集，2008 年 11 月 5 日-11 月 7 日（淡路島）

15. 宮崎英治、田川雅人、横田力男、石澤淳一郎、木本雄吾，“シロキサン変性ポリイミドフィルムの耐原子状酸素性評価”，第 52 回宇宙科学技術連合講演会アブストラクト集，2008 年 11 月 5 日-11 月 7 日（淡路島）

16. 横田久美子、田川雅人，“低軌道における原子状酸素誘起材料劣化とその分子コンタミネーション源としての可能性（2）”，日本航空宇宙学会 第 52 回宇宙科学技術連合講演会 2008 年 11 月 7 日（淡路島）

17. 田川雅人、横田久美子，“宇宙環境における熱制御材料の劣化現象”，第 29 回日本熱物性シンポジウム，2008 年 10 月 8 日-10 月 10 日（東京）

18. 田川雅人、横田久美子、北村晃、松本康司、吉越章隆、寺岡有殿，“原子状酸素を照射した水素化ダイヤモンドライクカーボン薄膜の水素分布”，第 69 回応用物理学学会学術講演会，2008 年 9 月 2 日-9 月 5 日（春日井）

19. 田川雅人、横田久美子，“宇宙航空技術における EUV 光アブレーション”，第 55 回応用物理学関係連合講演会，2008 年 3 月 27 日-3 月 30 日（船橋）

20. 横田久美子、田川雅人，“低軌道における原子状酸素誘起材料劣化とその分子コンタミネーション源としての可能性”，日本航空宇宙学会 第 51 回宇宙科学技術連合講演会 2007 年 10 月 30 日（札幌）

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.mech.kobe-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

横田 久美子 (YOKOTA KUMIKO)

神戸大学・大学院工学研究科・助手

研究者番号：20252794

(2) 研究分担者

田川 雅人 (TAGAWA MASAHITO)

神戸大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：10216806