

# SiC ワイヤにおける二次電子放出の大強度ビームに対する耐久性 DURABILITY OF SECONDARY ELECTRON EMISSION FOR HIGH-INTENSITY BEAM ON SiC WIRE

明午 伸一郎<sup>\*A)</sup>、中野 敬太<sup>A)</sup>、大久保 成彰<sup>B)</sup>、湯山 貴裕<sup>C)</sup>、石井 保行<sup>C)</sup>  
Shin-ichiro Meigo<sup>\*A)</sup>, Keita Nakano<sup>A)</sup>, Shigeaki Okubo<sup>B)</sup>, Takahiro Yuyama<sup>C)</sup>, Yasuyuki Ishi<sup>C)</sup>

<sup>A)</sup>J-PARC Center Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

<sup>B)</sup>Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

<sup>C)</sup>Takasaki Advanced Radiation Research Institute (QST)

## Abstract

Beam profile monitors play an essential role in the stable operation of high-power accelerator facilities such as spallation neutron source and accelerator-driven transmutation systems (ADS) to efficiently reduce the hazards of nuclear reactor waste. The beam profile at the spallation neutron source of J-PARC is observed by the secondary electron current on the silicon carbide wires, which are implemented as multi-wire monitors. Since the beam durability of SiC is important, the degradation of SiC wires was measured using low-energy heavy ions to accelerate the radiation damage on SiC. In this study, the beam profile monitor based on luminescence was also developed using low energy heavy ions.

## 1. 頭語

日本原子力研究開発機構 (JAEA) では、原子炉で生じるマイナーアクチノイドの廃棄物の有害度低減のために、運動エネルギー 1.5 GeV となる 30 MW の大強度陽子加速器を用いた核変換システム (Accelerator Driven System: ADS) [1] を開発しており、ベルギーや中国でも同様な施設が開発されている。ADS では鉛ビスマス共晶体 (LBE) を有力な候補の一つとしており、加速器の真空領域と LBE の境界となるビーム窓の損傷が重大な研究課題の一つとなる。J-PARC では、ビーム窓などの材料損傷評価や ADS のための基礎研究のために核変換実験施設 (TEF-T) [2] を引き継ぐ陽子ビーム照射施設の建設を計画している。LINAC の 400 MeV の負水素イオンビームの繰り返しを 25 Hz から 50 Hz にアップグレードし、25 Hz の繰り返しでビームを陽子ビーム照射施設に入射し ADS の材料開発に向けた試験を行う。ADS に用いられる材料の損傷評価のためには、年間に原子あたり 20 回の弾き出しが生じる (20 dpa) 程度の高いビーム照射が必要となり、 $30 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  [3,4] と高い電流密度を持つビームを標的に入射する予定としている。物質および生命科学のさらなる探求のために、J-PARC センターでは中性子およびミュオンを供給する第 2 ターゲットステーション (TS2) の建設も計画している。TS2 は、中性子およびミュオンの生成輝度を MLF の約 10 倍向上させることを狙うため、ビーム径は MLF より小さくなり、標的での電流密度は MLF の数倍となる予定である。

上記施設の安定したビーム運転を行うためには、標的直前に設置したビームプロファイルモニタが重要となる。J-PARC センター [5] の物質・生命科学実験施設 (MLF) 内に設置した核破砕中性子源 [6] 及びミュオン源 [7] は、740 kW 以上の大強度ビーム運転

を開始し、さらに 1 MW の安定したビーム運転試験を開始した。MLF では 2 章に記載したように、複数の炭化ケイ素 (SiC) 製のワイヤを用いたマルチワイヤ型プロファイルモニタを用いており、ワイヤの二次電子電流によりプロファイルを計測する。2019 年 7 月に実施した 1 MW のビーム試験において約 10 時間程度の運転を問題なく 98% 以上の高い稼働率でユーザーに供給できることを示し、2020 年では数日間の利用運転を無事に行えることを示した。MLF では来年には 800 kW 以上の大強度ビーム運転の長期運転を予定しており、今後の大強度ビーム運転におけるビームモニタの損傷評価が重要となる。

MLF の標的近傍のビームモニターにおいてピーク電流密度は、1 MW 運転時に  $8.4 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  となる。MLF では運転を開始しこれまでに、使用する SiC ワイヤの損傷によりビームプロファイルの測定が不可となったことはないものの、今後の大強度ビームの長期間の運転においては不明である。J-PARC で建設予定の施設では、標的のビーム電流密度は MLF より高くなるため、SiC の陽子ビームに対する耐久性は重要となる。本研究では数 GeV 陽子に対し約  $10^5$  倍の損傷率を与える低エネルギー重イオンビームを用いて、SiC ワイヤのビームに対する耐久性を測定した。

さらに、SiC ワイヤのプロファイルを用いる場合には、ワイヤにおける投影プロファイルの情報をそれぞれ水平および垂直方向に取得するが、二次元の分布を得ることができない。MLF では、ピーク電流密度を抑えるため、非線形光学によるビーム収束 [8] をしているため、2 次元情報を得ることが望ましい。また、諸外国の核破砕中性子源 (SNS, ESS) では、蛍光現象を用いた二次元プロファイルモニタが使用されており、この開発が望まれる。しかしながら、諸外国の核破砕中性子において蛍光型モニタは、ビームによる蛍光量の著しい劣化が報じられており、劣化の少ない蛍光体の材料開発が重要となる。

\* meigo.shinichiro@jaea.go.jp

## 2. MLFにおける標的近傍のビームモニタ

### 2.1 陽子ビーム窓に設置したビームモニタ

J-PARCの物資・生命科学実験施設(MLF)の核破砕中性子源におけるビーム運転では、中性子源の標的に入射する陽子ビームの状態を継続的に観察することは重要となる。このため、標的直前には常時ビームを測定するビームモニタの設置が必要となる。標的に生成した中性子等によりモニタは高度に放射化するため、モニタは定期的に遠隔操作による交換が必要となる。また、核破砕中性子ターゲットで発生した中性子の遮蔽のため、モニタには遮蔽が必要となる。交換作業の煩雑さや遮蔽の減少を目指し、ビームモニタは加速器の真空領域と中性子ターゲット周囲のヘリウム領域(ヘリウムベッセル)との間の物理的隔壁として機能する、陽子ビーム窓(Proton Beam Window: PBW) [9] に設置した。陽子ビーム窓には、直径0.6 mのピローシールと呼ばれる圧空操作により膨張可能な真空シールを有し、これにより遠隔操作により窓とモニタを一体で交換することが可能となる。陽子ビーム窓は標的中心から1.8 mとなる近傍に設置し、標的に入射するビーム状態の観測が可能となる。MLFと類似した陽子ビーム窓とモニタ構造は、J-PARCで建設予定の陽子ビーム照射施設やTS2においても使用する予定である。

陽子ビーム窓の真空側にはSiCのワイヤを用いたマルチワイヤプロフィールモニタ(Multi Wire Profile Monitor MWPM) [10, 11] を設置した。これらの概要をFig. 1に示す。MWPMの各ワイヤの感度を校正のため、狭い幅のビームを用いビーム走査により校正した。この結果、個々のワイヤの感度のばらつきは最大でも数%以下であった。標的におけるピーク電流密度はMWPMの測定結果から導出し、MLFでは一定以上のピーク電流密度を持つ場合やビーム位置の変異がある場合には、機器保護システム(Machine Protection System: MPS)によりビームが自動的に停止させる。

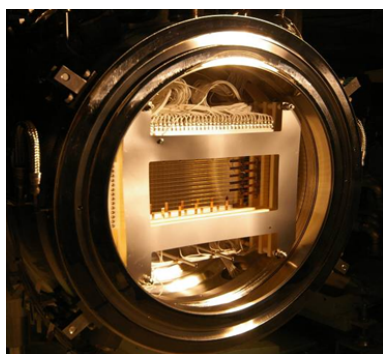


Figure 1: Multi-Wire Profile Monitor (MWPM) implemented with the Proton Beam Window (PBW) at MLF.

陽子ビーム窓に配置したMWPMは固定式であり常時ビームに晒され観測するために、センサーとなるワイヤには長寿命が要求される。1号機の陽子ビーム窓のプロファイルモニタは、冗長性を持たせるた

めに、SiC(直径0.1mm)とタングステンワイヤを用いた2種類のワイヤによるモニタを用いた。陽子ビーム窓1号機の使用中に、タングステンワイヤから信号を生じない事象があったため、2号機以降はSiCワイヤのみの使用とした。

2008年より1号機の陽子ビーム窓とビームモニタの使用を開始し、1.9 GWhの積分ビーム強度の照射後に2013年秋に2号機に交換した。その後、2号機および3号機を使用し、それぞれの積算ビーム強度は2.5および5.6 GWhとなり、外観検査において特に重大な問題なかった。2020年秋に4号機に交換し、現在(2021年8月)において2.6 GWhの積分ビーム強度を照射し、2023年に5号機に交換する予定となる。

### 2.2 SiC センサワイヤ

大強度加速器施設においてモニタに用いられるワイヤと陽子との相互作用によるビーム損失が重要な問題となるため、ワイヤ材にはビーム損失が少なく融点の高いものが望まれる。一般的にセンサワイヤは、高い融点(3422°C)を有するタングステンが選択されるが、クーロン散乱による影響を考慮すると、原子番号が低い材質をセンサワイヤに用いることが望ましい。タングステンの原子番号は74となるのに対し、SiCの平均原子番号は約10と低く、ビーム損失およびビーム散乱の影響に対して有利となる。また、炭化ケイ素(SiC)は、2730°Cの高い融点を持ち、入射陽子に起因する放射線損傷に対し高い耐性を持つ[12]ことが知られているため、MLFではSiCをセンサワイヤとして選択した。

## 3. SiC ワイヤ耐久性試験

MLFにおいて、SiCを用いたプロフィールモニタのワイヤは最大で5.6 GWhまでの照射量において問題ないことが確認されたが、今後長時間継続する1 MWの大強度ビーム運転の長期間の運転では不明となる。陽子ビーム窓本体の寿命は、積算陽子線束 $3 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ まで健全性が保たれることが予想され[9]、これは積分強度に15 GWhに相当し約3年間の時間に相当する。

### 3.1 実験

実験は量子科学技術研究開発機構(QST)高崎量子応用研究所のイオン照射施設(TIARA)のタンデム加速器を用いて行った。実験に用いた体型の模式図とFig. 2に示す。MLFのプロファイルモニタで用いられるSiCワイヤ(直径0.1 mm)を用い、 $\text{Ni}^{+3}$ イオン(全運動エネルギー10.5 MeV)を照射した。ビーム照射は合計で4時間程度行い、ファラデーカップによりビーム電流は65 nAとなった。入射Niイオンの電流は、直径2 mmの開口を持つファラデーにより測定した。ワイヤに入射するビーム電流密度の均一性を保つため、1 kHzの周波数を持つビームスキャナーにより水平方向に約10 mm掃引した。試料に入射するビームの粒子電流密度は約 $0.69 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ となり、MLFの約8.3%となった。

SiC ワイヤに生じる電流をピコアンペアメータ (Keithley 6487J) により測定した。イオンビーム電流の測定のために、ワイヤ下流側に電氣的に絶縁したステンレス (SUS304) 板 (直径 20 mm、厚さ 5 mm) をビームストッパーとして設置し、この二次電子電流により入射するイオンビーム電流を観測した。ステンレス板で生じた電子の SiC ワイヤへの流入を防ぐために、ワイヤはビームストッパーから 26 mm 程度離し、カプトンテープにより端部を絶縁し垂直方向に張った (Fig. 3)。なお初期の実験において、絶縁処理したワイヤをビームストッパーに数 mm 程度の近傍に設置したが、ビームストッパーからの電子の流入により、正となる電流が負となることを観測した。ストッパーからワイヤを離すこと電子の流入を防止できた。

数 GeV 陽子の場合には、Si の核反応により多数の He の生成があるため、この影響の評価のため試験的な実験として、He<sup>+</sup> イオン (1 MeV) も試料に入射し二次電子電流も同様に測定した。He 入射の実験の場合にはビーム電流測定用の絶縁したステンレス板の設置しておらず、サーモビューワで SiC ワイヤ温度を測定し入射ビーム電流の測定の代わりとした。温度とビーム電流の相関関係は良好であったが、Ni と比較し He のビーム電流は安定していなかったため、He イオンを用いた詳細な測定は今後の課題とする。

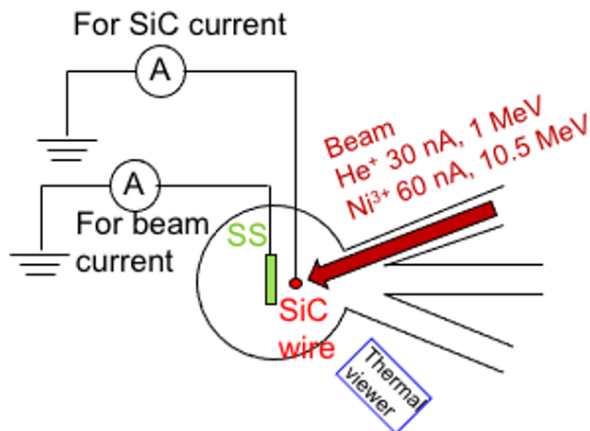


Figure 2: Schematic of the experimental setup of SiC wire with He and Ni ion beam irradiation.

### 3.2 弾き出し損傷の評価

数 GeV 領域の陽子および Ni イオン (10.5 MeV) の SiC 中の弾き出し損傷を PHITS コードを用いて評価した。SiC 中の深さの関数として各入射粒子の原子あたりの弾き出しを相対値として弾き出し損傷を Fig. 4 に示す。図のように Ni イオン入射の場合には、数 GeV 陽子に比べ約 10<sup>5</sup> 倍以上の損傷を与えることとなり、短時間で効率的な損傷を与えられる。Ni イオンは、飛程が約 3 μm となり、飛程付近にブラックピークに起因する著しく高い損傷のピークを生ずる。一方、数 GeV 陽子の場合には飛程は数十 cm とワイヤの直径 (0.1 mm) より長くなり、SiC ワイヤに

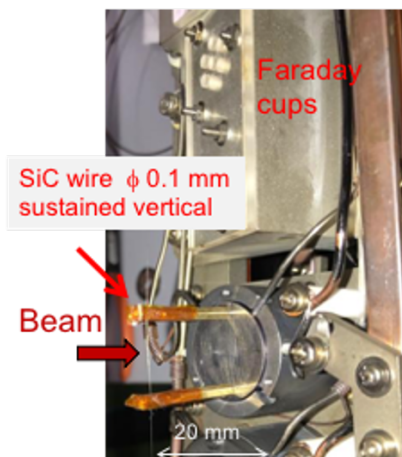


Figure 3: Status of the present SiC wire.

均一な損傷を与える。本実験の解析では、保守的な評価のためブラックピークの約 0.1 倍となるワイヤ表面における弾き出し損傷の値を用いた。

本評価は弾き出し損傷に基づき行うため、弾き出し損傷の指針となる弾き出し断面積の精度が重要となる。このため、数 GeV 陽子に対する弾き出し断面積の測定を J-PARC で行った。実験結果との比較により、PHITS コードによる計算は実験をよく再現できることが示された [13]。

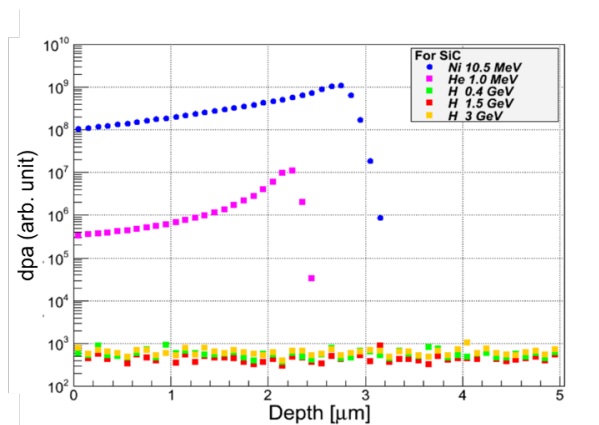


Figure 4: Displacement distribution in SiC with irradiation of He (1 MeV), Ni (10.5 MeV) and proton in the energy region from 0.4 to 3 GeV.

### 3.3 SiC ワイヤ耐久性試験結果

一次イオンビームに対する SiC ワイヤの二次電子電流の効率を Fig. 5 に示す。二次電子電流の効率は SiC で観測した電流をビームストッパーで観測した値で除した。典型的な SiC とビームストッパーの電流はそれぞれ、50 nA および 2 μA となり、入射イオンビーム電流よりも高い値となった。ビームの積算強度が約 1.7 dpa に相当する際に、ビームを一度停止し、ビーム電流に対する比例応答性をビーム電流を変更し確認し、よい比例応答性を持つことを確認した。この後の測定において、二次電子電流効率が一

時的に上昇することが観測された。この原因は明確にわからないが、恐らくワイヤ温度の低下に起因するものと考えられ、今後調査を行う。

Ni ビーム照射による SiC の積算損傷は、Fig. 5 に示されるように 3.5 dpa となり、弾き出し損傷とともに約 6% の低下を観測した。この照射量は、実機 ADS(1.5 GeV 陽子) および陽子ビーム照射施設 (0.4 GeV 陽子) の  $30 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  の条件において、約 1.3 年間の運転期間に相当し、SiC ワイヤは十分な耐久性があることが判明した。また、ピーク電流密度が  $8.4 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  となる MLF の 1 MW 運転では、約 4.7 年間の運転期間に相当し、寿命としている 3 年間で満足することが判明した。

### 3.4 二次電子に関する考察

イオンビーム電流が 67 nA に対し、SiC ワイヤで観測した電流は 50 nA となった。ビームストッパーでは入射する電流に対し、約 30 倍の電流を観測した。入射電流より高い電流を観測した原因は、二次電子放出が支配的になるためと考えられる。イオン入射に伴う、平均的な自由電子のエネルギーのほとんどは数十 eV となる。このエネルギーに相当する電子の飛程は  $1 \mu\text{m}$  より短くなり、SiC 表面近傍の電離作用で生じた電子の電流しか観測されない。したがって、表面上の dpa を基準に損傷の評価に用いることは妥当と考えられる。またブラックピークで損傷は表面に比べて大きいものの、二次電子の放出にはほとんど寄与していないと考えられる。今後 LET の異なるイオン入射ビームを用い、明確にする予定となる。

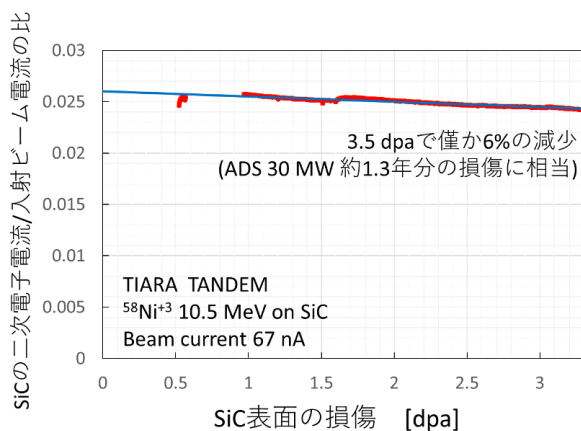


Figure 5: Result of secondary electron emission efficiency to ion beam current during beam exposure as a function of dpa in SiC.

## 4. 蛍光イメージングモニタの耐久性試験

SiC ワイヤを用いた MWPM では水平および垂直方向の投射プロファイルしか得ることができず、二次元分布を得ることができないため、蛍光による二次元プロファイルモニタの試験を行った。米国オークリッジ国立研究所 (ORNL) の核破碎中性子源 (SNS) では、ターゲット上の二次元プロファイルの

取得のため、水銀ターゲットの容器に塗装した蛍光体モニタを用いている。ビーム照射に伴う劣化により著しい発光の劣化が観測されており、劣化による発光減衰の少ない材料の開発が必要となる。そこで、TIARA のサイクロトロン施設において、さまざまな蛍光体にビームを入射する試験を行った。入射粒子には、 $^{40}\text{Ar}^{8+}$  ビーム (エネルギー 107 MeV) を用いて試験を行った、これにより単位粒子束あたりで 0.4 及び 3 GeV 陽子に対し、表面において約  $10^4$  倍の損傷を試料に与えビームに起因する損傷の加速試験を行った。

### 4.1 蛍光スペクトル測定試験

実験体型を Fig. 6 に示す。候補となる数種類の蛍光体試料に対し、ビーム照射中の発光強度の振舞いを分光器により測定した。蛍光体試料には、アルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) に Cr を約 0.5wt% 添加したものを用い、アルミニウム製の母材に溶射した。照射中の発光状態の確認のためカメラおよび 2 MGy の耐放射線性を有するファイバースコープを用いた。試料から発せられる蛍光を、蛍光スペクトルを分光計 (QEPro : Ocean Photonics) で観測し、試料から放出された光子のスペクトルを測定した。入射ビームには、Ar 107 MeV を用い、発光強度のビーム位置依存性の抑制のため、非線形光学により  $\square 50 \text{ mm}$  において一様な強度分布となるようビーム整形を行った [14]。ビーム電流は、ファラデーカップをビームライン中に挿入し測定した。ファラデーカップによる試料照射中のビーム電流は測定できないため、試料の上流側に SiC ワイヤを設置し照射中のビーム電流を測定した。

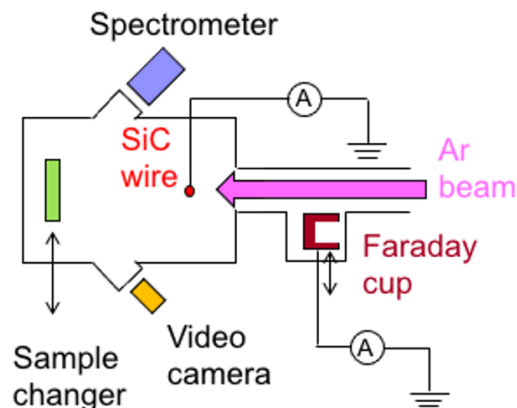


Figure 6: Schematic of the experimental setup for beam profile luminescence imaging system for Ar-beam irradiation.

### 4.2 蛍光スペクトル測定結果

$\text{Al}_2\text{O}_3$  に Cr を 0.5wt% ドープした試料の発光状態、発光スペクトル強度、およびピーク強度の時間的な振舞いを Fig. 7 示す。Cr をドープした試料は、Cr により励起した波長 694 nm 付近の鋭いピークと橙色の発光を観測した。発光強度はカメラで明確に確認でき十分であるものの、照射量と共にピーク強度が

減衰し、約 6,000 秒の照射により開始時より 50% 減衰した。この試料へのビーム照射量は  $3.8 \times 10^{-2}$  dpa となり、ADS の 30 MW ビーム運転において 170 時間に相当するものとなった。微量な不純物を含ませた  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の結果を、Fig. 8 に示す。Cr をほとんど含まないため明確なピークは観測されず、連続的なスペクトルとなる白色光を観測した。図中の右側に短波長領域 (350 nm 付近) の発光強度の振舞いを示す。Cr を含む試料に比べ発光強度は著しく小さいものの、照射による減衰は 30% に抑えられた。以上の成果を踏まえて、今後は照射による発光量の減衰を抑えた試料に関する研究をさらに進めるとともに、数 GeV 陽子に対する発光強度を J-PARC 加速器施設において測定する予定である。

## 5. 結語

大強度加速器施設における標的付近に設置するビームプロファイルモニタの開発のため、センサーワイヤとして候補となる SiC のビームに対する耐久性を測定した。損傷率の加速のため、数 GeV 陽子より高い損傷率を与える Ni ビームを SiC に照射し、二次電子の放出率を電流により測定した Ni ビーム照射による SiC の損傷は 3.5 dpa となり、二次電子放出率は僅か約 6% 低下した。この損傷は ADS(1.5 GeV 陽子) と MLF の 1 MW 運転の運転条件において、約 1.3 年間および約 4.7 年間の運転にそれぞれ相当し、SiC ワイヤはこれらの条件において十分な耐久性があることが判明した。また、二次元プロファイルの測定のため、蛍光体イメージングのプロファイルの開発を行った。蛍光体の場合には放射線損傷に起因する劣化は大きいものの、劣化の少ない材質の候補を得ることができた。

## 謝辞

本研究は、核変換技術研究開発補助事業によって得られた成果を含む。

## 参考文献

- [1] T. Mukaiyama, *Prog. in Nucl. Energy* 38, 107 (2001).
- [2] H. Oigawa *et al.*, Proc. Global2001, Paris, France (2001).
- [3] 核変換ディビジョン, “J-PARC 核変換実験施設 技術設計書”, JAEA-Tech. 2017-003 (2017).
- [4] S. Meigo, *J. Nucl. Mater.* 450, pp. 8–15 (2014).
- [5] The Joint Project Team of JAERI and KEK, JAERI-Tech 99-56 (1999).
- [6] Y. Ikeda, *Nucl. Instr. Meth. A* 600, pp. 1–4 (2009).
- [7] Y. Miyake *et al.*, *Physica B* 404, pp. 957–961 (2009).
- [8] S. Meigo *et al.*, *Phys. Rev. Accel. Beams* 23, 062802 (2020).
- [9] S. Meigo *et al.*, *J. Nucl. Mater.* 450, pp. 141–146 (2014).
- [10] S. Meigo *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. A* 562, pp. 569–572 (2006).
- [11] S. Meigo *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. A* 600, pp. 41–49 (2009).
- [12] G.E. Youngblood *et al.*, *J. Nucl. Mater* 258–263, pp. 1551–1556 (1998).
- [13] H. Matsuda *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.* 57, pp. 1141–1151 (2020).
- [14] Y. Yuri *et al.*, *Phys. Rev. Accel. Beams* 10, 10401 (2007).

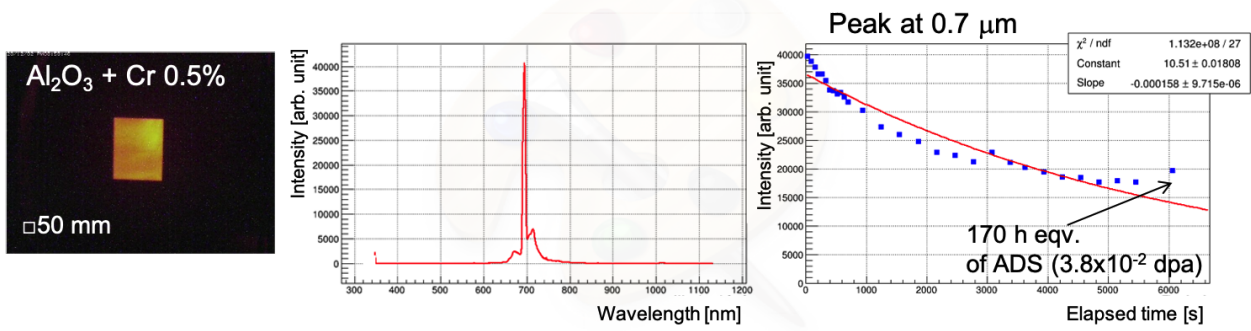


Figure 7: Results of view image, luminescence spectrum and peak luminescence intensity behavior during Ar-beam irradiation for Cr doped Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sample.

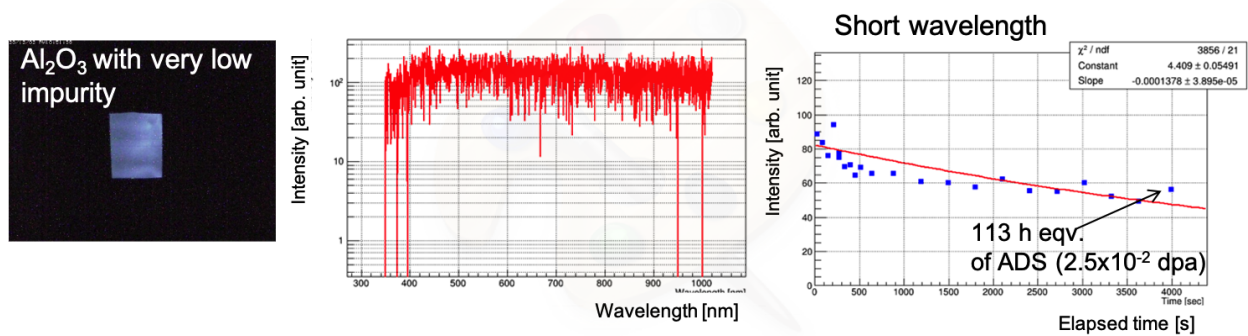


Figure 8: Same as Fig. 7 but for the sample of pure Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> with slight impurities.