

J-PARC 3GeV シンクロトロン用荷電変換フォイルの長寿命化に向けたとり組み INITIATIVES TO ADDRESS THE LIFETIME IMPROVEMENT OF HBC STRIPPER FOIL FOR 3 GeV SYNCHROTRON OF J-PARC

吉本 政弘^{#, A)}, 仲野谷 孝充^{A)}, 山崎 良雄^{A)}, サハ プラナブ^{A)}, 金正 倫計^{A)},
山本 春也^{B)}, 岡崎 宏之^{B)}, 田口 富嗣^{B)}, 山田 尚人^{B)}, 山縣 諒平^{B)}
Masahiro Yoshimoto^{#, A)}, Takamitsu Nakanoya^{A)}, Yoshio Yamazaki^{A)}, Pranab Saha^{A)}, Michikazu Kinsho^{A)},
Shunya Yamamoto^{B)}, Hiroyuki Okazaki^{B)}, Tomitsugu Taguchi^{B)}, Naoto Yamada^{B)}, Ryohei Yamagata^{B)}

^{A)} Japan Atomic Energy Agency (JAEA) / J-PARC

^{B)} Quantum and Radiological Science and Technology (QST) / Takasaki

Abstract

The J-PARC RCS adopts the Hybrid type Boron-doped Carbon (HBC) stripper foil, which was developed in KEK to improve the lifetime. The HBC foil is fabricated by arc-discharge method using the boron doped carbon electrodes which are manufactured from mixed powders of carbon and boron carbide (B4C) by sintering. Then, the HBC foil consists of amorphous carbon, and it has a cluster structure with mixed the B4C large clusters of 300 ± 200 nm derived from the cathode electrode and the knocked-down boron and carbon small clusters of 3 ± 2 nm derived from the anode electrode. To investigate the role of the boron in the HBC foil, the cathode or anode was replaced with pure carbon electrode and Ar beam irradiation test with modified HBC foils was carried out. As a results, the modified HBC foil with pure carbon rod for the cathode electrode is improving in the lifetime.

1. はじめに

J-PARC 3GeV シンクロトロン加速器(RCS: Rapid Cycling Synchrotron)では、大強度陽子ビームを実現するために荷電変換フォイルを用いた荷電変換ビーム多重入射方式を採用している。この入射方式では、リニアックから入射される負水素ビームが荷電変換フォイルを通過する際に陽子に変換され、周回ビームに重ねることが出来る。そのため、ビームサイズを広げずに大強度ビームを蓄積することができる。一方で、ビーム入射期間中は、リニアックからの負水素ビームと RCS で周回する陽子ビームの双方がフォイルを通過するため、荷電変換フォイルのビーム照射に対する耐久性能の向上は大きな課題となっている。

RCS では、ホウ素を添加した炭素電極によるアーク放電法で製膜した薄膜 (Hybrid type thick Boron-doped Carbon: HBC)[1]を荷電変換フォイルとして採用している。HBC フォイルは、ホウ素を添加することで従来の純炭素薄膜と比較してビーム照射に対する寿命の向上に成功した。しかし、ホウ素添加によるビーム照射に対する耐久性能向上のメカニズムは明らかになっていない。そこで、我々は HBC フォイルにおけるホウ素の役割を明らかにすることを目的とし、QST 高崎・イオン照射施設 (TIARA: Takasaki Ion Accelerators for Advanced Radiation Application) のイオンビームを用いた照射試験を行ってきた。最近の試験結果から、カソード電極とアノード電極から飛来するホウ素の状態が異なっており、フォイル寿命に対しても大きく影響していることが分かってきた。本稿では、これまでの試験結果から推測される HBC フォイル内のホウ素の役割に関する考察と長寿命化に向けた検討について報告する。

[#] yoshimoto.masahiro@jaea.go.jp

2. HBC フォイルとは

2.1 HBC フォイル開発の経緯

HBC フォイルのベースとなった技術は 1988 年ごろに菅井氏によって開発された制御型 AC/DC アーク放電 (CADAD) 法[2]であった。交流アークや直流アーク放電を細かく制御してアーク蒸着により製膜しており、核となっている原理は、各電極面から真空中に放出される炭素粒子のサイズの違いとその組み合わせ率の最適化にあった。Figure 1 にアーク蒸着法による製膜の原理を示す。初めに、二つの電極を接触した状態で大電流を通電する。次に、電極を離すと電極間に高電界が発生しアーク放電が起こる。その際に、電離したイオンが高電界で加速されカソード電極に衝突することで炭素クラスターがスパッタされる。一方で、アノード電極は加速した電子の衝突により加熱され、炭素が蒸発される。菅井氏によるとカソード電極から放出される炭素クラスターは 300 ± 200 nm と大きいアノード電極由来の炭素粒子は 3 ± 2 nm と小さいこと、そしてカソード・アノード電極からの炭素蒸発量をそれぞれ W_c と W_a とすると、 $R_c = W_c / (W_c + W_a)$ で定義される量(カソード比と定義)がフォイル寿命に強く影響するパラメータであることが見いだされ、 $R_c = 60 \sim 80\%$ の領域が最もビーム照射に対して耐久性が高いことが明らかになった。しかし、CADAD 法では膜厚を $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ を超えて蒸着を続けると、一部基板から剥離してしまい、安定して製膜することが出来なかった。J-PARC RCS では、膜厚 $300 \sim 500 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の荷電変換フォイルを必要としていたため、新しい炭素薄膜の開発が必要とされていた。次に、CADAD 法をベースに炭素電極にいくつかの軽元素を添加したところ、ホウ素で顕著な密着性の向上することを発見した。最終的には炭化ホウ素(B₄C)の粉体を添加した炭素電極棒を用いるこ

とで、 $700 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ までの厚い炭素フォイルの製作に成功した。さらに、ビーム照射に対する耐久性を調べた結果、ホウ素 20%が最適であることを見出した。こうして製作したフォイルを HBC フォイルと称された[1]。

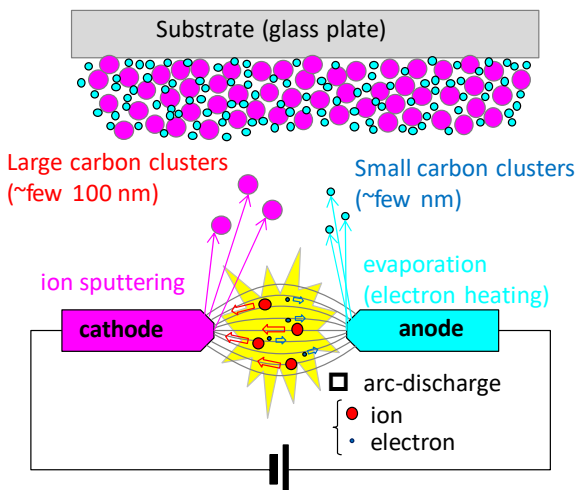


Figure 1: Schematic diagram of the carbon deposition of arc-discharge method.

J-PARC RCS では、2007 年のビームコミッショニング開始当初から HBC フォイルを使用してきた[3]。利用運転においては、2008 年の 4kW のビーム出力から開始し、年を追うごとに段階的に出力を上げ、2018 年には 500kW に達した。その間、HBC フォイルは大きなトラブルも無く、年 1 回のフォイル交換で運転を継続することができた [4]。また 2018 年 7 月の利用運転終了後に、1MW ビーム出力での連続試験が行われ、わずか 1 時間であったが、HBC フォイルに目立った変化もなく、1MW のビームに耐えることが確認された[5]。これらの使用実績から HBC フォイルのビーム照射に対する優れた耐久性を改めて実証することができた。

2.2 J-HBC 作製開始と課題

J-PARC RCS の運転開始から、HBC フォイルは KEK 菅井ラボから供給を受けていたが、2016 年 1 月に菅井ラボが運転停止となり、フォイルの供給が途絶えてしまった。そこで、フォイルの蒸着装置を KEK つくばから JAEA 東海に移設し、新たな体制でフォイル製作を開始した[6-7]。蒸着装置のオーバーホールや改修を経て 2017 年にフォイルの製膜に成功した。新たな体制で製作した HBC フォイルをこれまでのオリジナル HBC フォイルと区別して J-HBC フォイルと称することとした。

J-HBC フォイルの製作はオリジナル HBC フォイルの製作方法の模倣からスタートしたが、断片的な情報しか残されておらず、また装置のオーバーホールや改修により製膜環境が変わってしまった。そのため両者の間にはいくつかの相違点が生じたが、最も大きな相違点が CADAD 法の発見以降、重要視していたカソード比(R_c)である。J-HBC ではカソード比が $R_c=0.2\sim 0.4$ とかなり低く、菅井氏が発見したカソード比とフォイル寿命の規則性からみるとフォイル寿命は半分以下に劣化するように思われた。そこで、QST 高崎 TIARA を利用して、Ar ビー

ム照射試験を実施し、オリジナル HBC フォイルと J-HBC フォイルの寿命評価試験を行った。結果は、J-HBC フォイルもオリジナルの HBC フォイルと同等のフォイル寿命を有していることが分かった[8]。この結果を受けて J-PARC RCS でも J-HBC フォイルを用いた利用運転を開始した。Figure 2 にみられるように、600 kW ビーム出力運転での 2 か月連続運転および 1MW ビーム出力での 2 日間にわたる連続照射試験で使用し、どちらも問題なく使用できることが実証された。この結果は、HBC フォイルは CADAD 法によるフォイルと異なり、カソード比はそれほど重要なパラメータではないことを強く示唆している。



Figure 2: Schematic diagram of the carbon deposition of arc-discharge method.

Table 1: Cathode-anode Material Combinations List

| | Cathode-electrode | Anode-electrode |
|-----|------------------------|------------------------|
| ID1 | Carbon(0.8)+Boron(0.2) | Carbon(0.8)+Boron(0.2) |
| ID2 | Carbon(0.8)+Boron(0.2) | Carbon(1.0) |
| ID3 | Carbon(1.0) | Carbon(0.8)+Boron(0.2) |
| ID4 | Carbon(1.0) | Carbon(1.0) |

3. HBCフォイルの寿命向上に向けた取り組み

J-HBC フォイルの製作を開始してかなり経過してから、オリジナル HBC フォイルの最終的な製作方法では、カソード電極にホウ素添加炭素棒を使用していたのに対し、アノード電極は径を少し大きくした純炭素棒を使用していた。目的は不明だが、おそらくカソード比(R_c)を高めるための工夫の一つと考えられる。しかし我々は、この情報からカソード電極とアノード電極に対し、ホウ素添加炭素棒と純炭素棒の組み合わせを変えることで、フォイル中におけるホウ素の状態やホウ素によるフォイル寿命に与える役割を知るヒントが得られると考えた。そこで、Table 1 に示す電極の組み合わせを用いて、4タイプの J-HBC フォイルを製作した。すなわち、従来の両電極とも

ホウ素添加炭素棒のフォイルを ID1 とし、カソード電極のみ純炭素棒に変えたフォイルを ID2、アノード電極のみ純炭素棒に変えたフォイルを ID3、そして両電極とも純炭素棒に変えたフォイルを ID4 としてフォイルを製作した。ただし、ここではホウ素添加炭素棒と純炭素棒の双方とも径 10 mm のものを採用し、蒸着した膜厚は Ar イオン照射試験の条件から約 20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に設定した。これら製作したフォイルに対し、特にホウ素の状態に着目して分析を進め、最後に Ar ビーム照射試験によるフォイル寿命評価を行った。

3.1 フォイル表面の観察

Figure 3 は、ID1~ID3 の 3 種類のフォイルに対する光学画像と TEM 像を比較したものである。ID1 の光学画像は少し金色に見えるが、ID2 と ID3 は黒っぽくなっている。これは片側電極を純炭素に変えたことでフォイル中のホウ素の添加量が減ったためと考えられる。一方、TEM (transmission electron microscope) 像を見ると、ID1 と ID2 には数 10nm の grain がみられるが、これがカソード電極から飛来した B_4C クラスターの粒塊である。一方、ID3 はカソード電極に純炭素棒を採用したため、 B_4C クラスターは存在せず、アノード電極から飛来したホウ素は matrix 部に広く拡散していると考えられる。

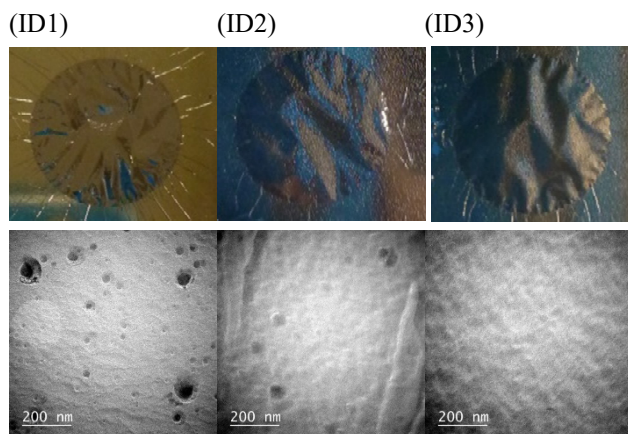


Figure 3: Foil surface observation (upper) and typical TEM image (lower) of the three types of the HBC foils.

3.2 RBS 法による組成分析

次に、QST 高崎 TIARA のシングルエンド加速器を用いて RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry) 法による組成分析を実施した。Figure 4 に測定で得られた RBS スペクトルを示す。また、スペクトル解析から得られた組成比を Table 2 にまとめた。この結果、ID1 が最もホウ素を含んでいることが確認できた。また、ID2 と ID3 を比較すると、カソード電極よりアノード電極から飛来するホウ素の方が多いたことが確認された。これは J-HBC フォイルのカソード比 (R_c) が低いことと一致している。

3.3 XPS 法による化学結合状態分析

ID1~ID4 の XPS (X-ray Photoelectron Spectroscopy) 法によるフォイルの表面分析を行った。Figure 5 は XPS のワイドスキンスペクトルを示す。RBS と同様に、炭素 (C1s)、ホウ素 (B1s)、酸素 (O1s) のピークがみられた。

Figure 6 ~ 8 は、これらの元素周辺を詳細に測定したナロースキンスペクトルを示しており、ピークシフトから化学結合状態を分析することが出来る。Figure 6 の C1s ピークのスペクトルを見ると、ID1 と ID2 には B_4C の結合がみられるが、ID3 と ID4 では B_4C の化学結合が存在しないことが明らかになった。これは、カソード電極由来のホウ素には元の B_4C 結合が残っているが、アノード電極由来のホウ素には元の B_4C は分解されて残っていないことを示している。同様に、Figure 7 の B1s ピークのスペクトルを見ても、ID1 と ID2 におのみ B_4C の化学結合を有している。一方で、ID1~ID3 において B-C 結合または BCO2 結合が存在しており、元の B_4C が加熱されて分解・蒸発して放出されるのが、アノード電極だけでなくカソード電極からも存在していることが分かる。

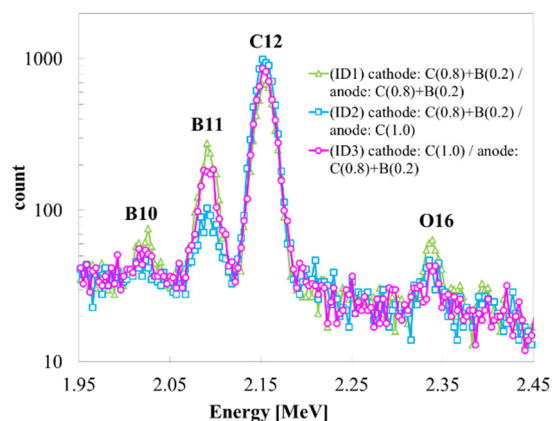


Figure 4: Comparison of RBS spectra between ID1, ID2 and ID3.

Table 2: Analysis result of composition ratio from the RBS spectra

| | Carbon | Boron | Oxygen |
|-----|--------|-------|--------|
| ID1 | 0.606 | 0.359 | 0.035 |
| ID2 | 0.818 | 0.159 | 0.023 |
| ID3 | 0.696 | 0.283 | 0.021 |

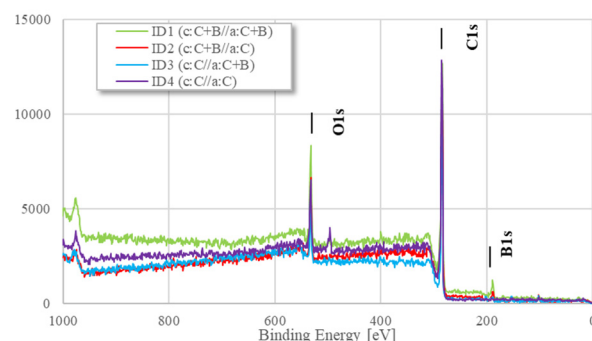


Figure 5: Wide-scan XPS spectra of four types of the HBC foils.

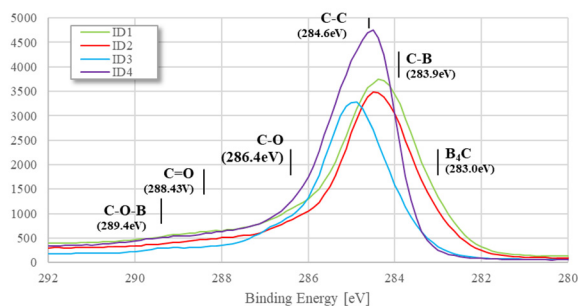


Figure 6: narrow-scan XPS spectra in the region of C 1s peak.

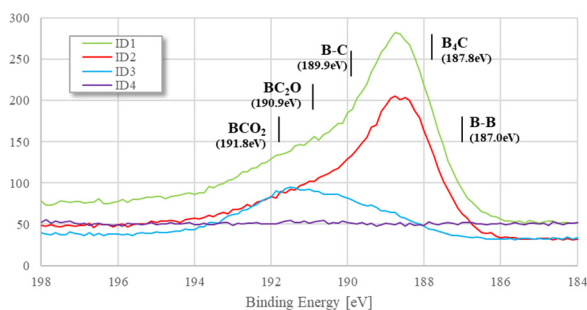


Figure 7: narrow-scan XPS spectra in the region of B 1s peak.

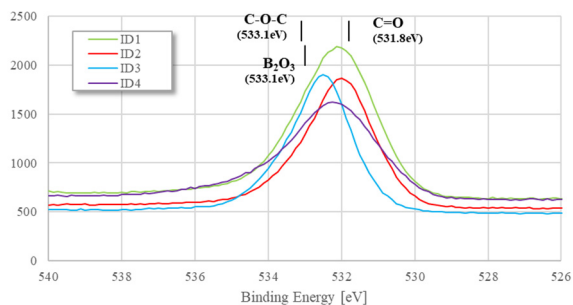


Figure 8: narrow-scan XPS spectra in the region of O 1s peak.

ここまでの分析結果から明らかになった HBC フォイルにおけるホウ素の状態をまとめると次の通りになる。

- カソード電極由来のホウ素は、元の B_4C の結合を維持しており、数十～数百 nm の大きなクラスターとして、局所的に点在している。
- アノード電極由来のホウ素は、元の B_4C の結合は一度 B 原子に分解され周辺の炭素と結合した、数 nm サイズの小さなクラスターとして、広範囲に広がっている。

3.4 Ar ビーム照射によるフォイル寿命評価

前節までの結果から、HBC フォイル内においてホウ素は 2 つの状態で存在していることが明らかになった。このうち、どちらが HBC フォイルにおけるビーム照射に対する耐久性能の向上に寄与しているのかを調べるために、QST 高崎 TIARA のイオン注入器を用いて、Ar ビーム照

射試験をおこない、フォイル寿命を評価した。ビーム条件は、エネルギー 300keV、ビーム電流 25nA、 ϕ 1mm のビームスリットを使用しており、照射位置でのビームサイズはおおよそ縦 2mm×横 3mm であった。

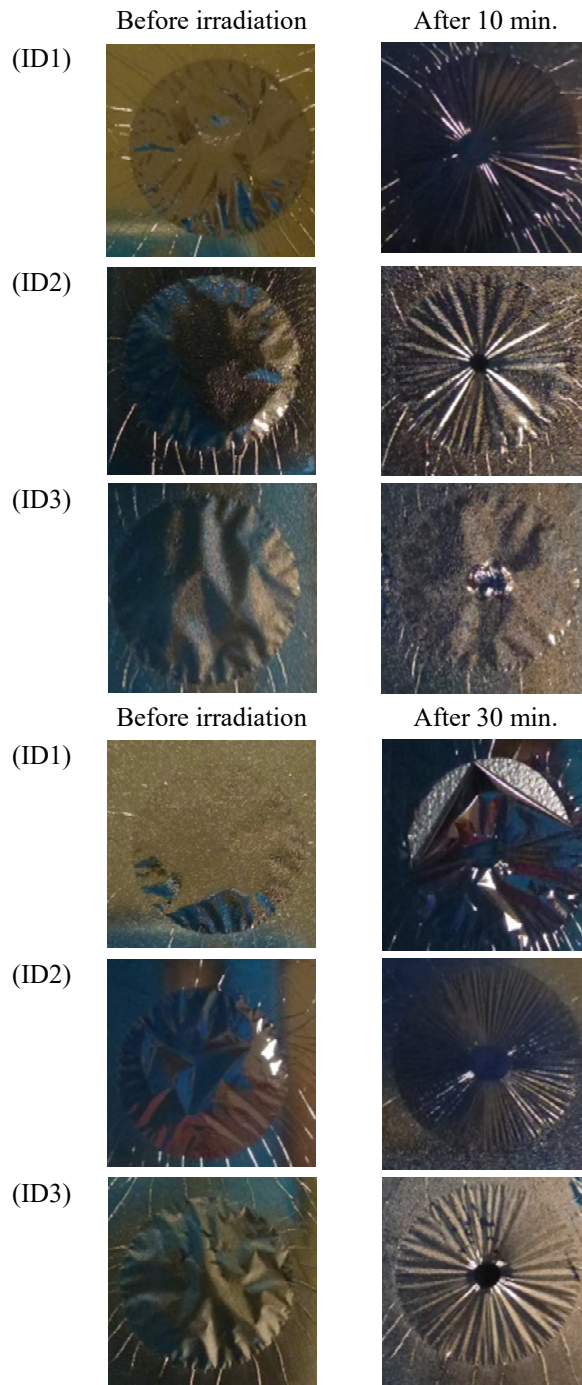


Figure 9: Changes in surface appearance due to Ar^+ beam irradiation.

Figure 9 に Ar ビーム照射前後のフォイルの写真を示す。まず、10 分までの照射結果を見る。ID1 の両電極にホウ素添加炭素棒を使用したフォイルの場合、照射直後から照射領域で体積収縮による鏡面化のような変化が発生し、周辺部は照射エリアに向かう張力により周辺部

に放射状のしわができる。一方、アノード電極を純炭素棒に取り換えたID2を見ると同様の変化が発生しているが、その変化の進行度合いはID1より緩やかであった。またカソード電極を純炭素棒に取り換えた ID3は、わずかに照射痕がついているが、ほとんど変化していないことが分かった。次に 30 分間照射したフォイルの結果をみると、ID1 はフォイルフレームの境界部分から亀裂が入り、破けてしまった。これは、照射領域に向かう張力が強くなりすぎた結果として境界部が破れただけで、照射領域での破損は見られなかった。ID2 はビーム照射による変化が進み、はっきりとした鏡面化と周辺部のしわがみられるが、まだ破損していない。また 10 分間照射ではほとんど変化のなかった ID3 も、30 分照射を続けると、同様に照射エリアの鏡面化と周辺の放射状のしわがみられるようになったが、変化の進行度合いはかなりゆっくりしていることが確認された。

今回の試験結果から、カソード及びアノード電極の電極材料の組み合わせを変えるだけでビーム照射によるフォイル変形の進行度合いが大きく変わることが明らかになった。これはフォイルの長寿命化に向けた大きな発見である。

3.5 荷電変換フォイルの長寿命化とは

ここで改めて荷電変換フォイルの寿命について議論を行う。フォイルにビームが照射されると、原子衝突による直接作用とイオン化・電子励起による熱的効果の間接作用の2つに大別され、それぞれが様々な事象を引き起こすが、フォイル破損のメカニズムについてはまだ詳細には解明できていない。しかし、2007 年以降の RCS での運用実績から、劣化過程についてかなり理解が進んだ。現在では次のようなシナリオを想定している [4]。1.照射直後は、結合力の弱い原子が原子核散乱によりフォイルの外に叩き出されるため、急激に膜厚減少がみられる。(ただし、この現象は製作されるフォイルの品質に大きく依存する。)2.その後、アモルファスフォイルのナノ結晶化による膜厚増加が支配的となる。同時に、フォイルの巨視的変形(照射部の平坦化および周辺部のしわの発生)が進行する。3.結晶化が緩和すると、巨視的変形もひと段落すると同時に膜厚増加も止まる。4.その後、熱分解ガス化による炭素脱離に伴い膜厚減少が支配的となる。5.さらに結晶化が進行した後もビーム照射を継続することで、ナノ結晶境界の隙間が空孔になり、やがてピンホールへと成長する。またフォイル全体が湾曲したり折れ曲がったりとした変形を起こす。6.最終的には照射部の結合が壊れフォイルに穴が開くまたは砕け散る。

一般的には、ビーム照射によるフォイル寿命とは照射開始から6までの期間と定義される。しかし J-PARC RCS においては、安定的な加速器運転の観点から、6 のフォイル破損に至る前に新しいフォイルに交換しており、現実的には5のフォイル全体の変形に伴い、入射ビームのフォイルからの漏れが大きくなったら交換する方針を取っている。このことから、フォイルの長寿命化とは、ビーム照射によるフォイル破損までの期間が長いよりも、ビーム照射によるフォイルの変形が緩やかなものが望ましい。今観点からみると、カソード及びアノード電極の炭素材料の組み合わせを変えることで照射によるフォイルの変形の進行度合いが大きく変わることが発見したことは大きな

発見であり、フォイルの長寿命化の研究において重要なマイルストーンになると考えている。今後さらにフォイルが破損するまでの照射試験を実施し、フォイル寿命に対する詳細な評価行っていく。また、本研究の最終目標は、ビーム照射によるフォイル破損のメカニズムを明らかにすることである。現在想定している劣化過程のシナリオの内、最も重要と考えているのがビーム照射による結晶化とその後の結合が壊れる過程であり、アノード電極由来の B_4C から分解され炭素と結合したホウ素が重要な役割を果たしていると考えている。今後、照射後のフォイルの結晶状態の変化に関する分析を中心に研究を進めていく。

4. まとめ

J-PARC RCS において荷電変換フォイルとして採用している HBC フォイルは、ホウ素(実際には B_4C の粉体)を添加した炭素電極によるアーク放電法で製作している。HBC フォイルでは、ベースとなった CADAD 法で製作したフォイルにおいて重要だったカソード比(Rc)は重要なパラメータではないことが分かった。また、今回、カソード及びアノード電極に対して、ホウ素添加炭素棒と純炭素棒の組み合わせを変えてフォイルを製作し、分析および Arビーム照射試験を実施した。その結果、HBC フォイル内においてホウ素は次の2つの状態で存在していることが明らかになった。すなわち、カソード電極由来のホウ素は、元の B_4C の組成を維持した数百 nm サイズの大型クラスターとして局所的に点在しており、アノード電極由来のホウ素は、元の B_4C が分解され B 原子が炭素と結合した数 nm サイズの小型クラスターとして広く分散している。さらに、カソード電極を純炭素棒に変えることでビーム照射によるフォイル変化の進行度合いが大幅に緩やかになることを発見した。これはフォイルの長寿命化にとって重要なマイルストーンになると考えている。今回の研究結果からアノード電極由来のホウ素と炭素が結合し小型クラスターとして広く分散しているホウ素が、HBC フォイルのビーム照射に対する耐久性に重要な役割を果たしていると考えている。今後、さらに詳細なビーム照射試験による寿命評価と照射後のフォイルの分析を進め、ホウ素添加による長寿命化のメカニズムの解明を目指す。

謝辞

本研究は量子科学技術研究開発機構の施設共用制度を用いて実施した。

参考文献

- [1] I. Sugai *et al.*, Nucl. Inst. and Meth. A561(2006), pp.16-23.
- [2] I. Sugai *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A265(1988)376.
- [3] M. Yoshimoto *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. 417 (2013), 012073.
- [4] P. K. Saha *et al.*, Phys. Rev. Accel. Beams 23, 082801 (2020).
- [5] K. Yamamoto *et al.*, Proceedings of the 17th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Sapporo, Japan, Sep. 2-4, 2020, WEPP03.
- [6] M. Yoshimoto *et al.*, IPJ Web of Conf. 229, 01001 (2020) INTDS2018
- [7] T. Nakanoya *et al.*, Proceedings of the 16th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, July 31- August 3, 2019, Kyoto, Japan, WEPI036.
- [8] M. Yoshimoto *et al.*, JPS Conf. Proc. 33, 011019 (2021).