

# J-PARC 加速器向けに製作したホウ素含有炭素荷電変換薄膜の使用前性能評価試験

Pre-use evaluation test of boron doped carbon stripper foil for J-PARC

吉本 政弘<sup>1)</sup> 仲野谷 孝充<sup>1)</sup> 山崎 良雄<sup>1)</sup> サハ プラナブ<sup>1)</sup>

Masahiro YOSHIMOTO Takamitsu NAKANOYA Yoshio YAMAZAKI Pranab SAHA

金正 倫計<sup>1)</sup> 山本 春也<sup>2)</sup> 岡崎 宏之<sup>2)</sup>

Michikazu KINSHO Shynya YAMAMOT Hiroyuki OKAZAKI

<sup>1)</sup>原子力機構/J-PARC センター <sup>2)</sup>量研

## （概要）

J-PARC 3GeV シンクロトロン加速器 (RCS) では、荷電変換薄膜として HBC フォイルを採用している。この HBC フォイルは、ホウ素添加炭素電極を用いたアーク蒸着法で製膜している。最近、この炭素電極の供給メーカーから従来品の生産中止と後継品のアナウンスがあった。従来の粉体・成形工程と異なり、またホウ素の添加率が従来品 20% から 10% と半減する。そこで急遽、炭素電極の違いが蒸着後のフォイルの性能に与える影響を調べることを主目的に変更した。従来方法で作成した炭素電極 GB220（ホウ素含有率 20%）と GB210（ホウ素含有率 10%）そして後継品の KM100（ホウ素含有率 10%）の 3 種類の電極を用いてフォイルを製膜し、PIXE による不純物同定、RBS による膜厚評価と組成分析を行った後に、Ar ビーム照射試験を行った。実験結果から、KM100 フォイルはビーム照射による形状変形はこれまでの GB220 に比べて進行が遅く、かつ変化の度合いも小さかった。しかし、破損するまでの寿命は GB220 に比べてわずかに短くなっていた。結論としては実機フォイルとしても十分使える性能を有すると考えられるが、正確な寿命評価のためには、引き続き照射試験を継続し、サンプル数を増やして統計精度を上げて確認する必要がある。

**キーワード**：大強度陽子ビーム、荷電変換ビーム多重入射、HBC フォイル

## 1. 目的

本研究の目的は、J-PARC RCS 向けの荷電変換薄膜として製作した HBC フォイルに対し、実機で使用する前に必要十分な性能を有するかを確かめる評価試験を実施すること、そして試験結果を製作パラメータにフィードバックしてフォイルの性能向上を目指すこと、である。この目的を達成するために、ビーム照射による荷電変換薄膜の破壊に至るメカニズムの解明を主課題に設定している。

HBC フォイルはホウ素を添加した炭素電極を用いたアーク放電法で製膜している。そして、ホウ素添加炭素電極は炭化ホウ素 ( $B_4C$ ) と炭素 (C) の混合粉末を成形・焼結して作られている。この炭素電極を用いて製膜したフォイル内のホウ素は、 $B_4C$  がホウ素原子 (B) に分解され C と広く結合した Matrix の中に数百 nm の  $B_4C$  の Grain が点在した状態になっている。前者は主にアノード電極から飛来し、後者はカソード電極からのみ飛来する。昨年度の TIARA での照射試験からは、このホウ素の状態が HBC フォイルの寿命に大きく影響していることを強く示唆する結果が得られた。今年度も引き続きカソード電極とアノード電極から飛来するホウ素の違いについて試験を進める予定だったが、最近になって電極供給メーカーから従来品の生産中止と後継品のアナウンスがあった。後継品は、従来の粉体・成形工程と異なり、またホウ素の添加率が従来品 20% から 10% に半減されることになった。これまでの試験結果からホウ素の状態がフォイルの耐久性に重要な役割を担っていると考えられるため、炭素電極のこれらの違いが蒸着後のフォイルの性能に影響することが強く懸念される。そこで急遽予定を変更し、従来品の電極 GB220（ホウ素含有率 20%）、GB210（ホウ素含有率 10%）そして後継品の KM100（ホウ素含有率 10%）の 3 種類の電極を用いてフォイルを製膜し、これまでと同等の照射分析試験を実施することで炭素電極の違いによる影響を調べた。

## 2. 実施方法

まず、粉体・成形工程時における不純物混入の違いを調べるため、電極からサンプル片を削り出

し、シングルエンド加速器の SB1 ラインで PIXE による不純物同定を行った。ビーム条件は、陽子×3MeV で  $\phi 1\mu\text{m}$  のマイクロビームを使用し、ビーム電流は約 45pA であった。次に、蒸着したフォイルの不純物同定とホウ素のマクロな分布状態をみるために PIXE および PIGE を行った。ビーム条件はガンマ線測定のため陽子のエネルギーを 1.7MeV まで下げた。その後、ビームライン SC1 に変更し、炭素とホウ素の組成比および膜厚評価のための RBS 測定を実施した。ビーム条件は陽子×3MeV で、ビームサイズ  $\phi 1\text{mm}$ 、ビーム電流は約 10nA であった。これらの分析試験を実施した後、イオン注入装置の IA1 ラインで Ar 照射によるフォイル寿命評価試験を実施した。ビーム条件は  $\text{Ar}^+ \times 300\text{kV}$  で、 $\phi 1\text{mm}$  スリット（ビームサイズが 2~3mm 程度）を採用し、ビーム電流を 50nA、1  $\mu\text{A}$ 、2  $\mu\text{A}$  と三段階に調節し、ビーム照射によるフォイルの劣化・破損過程を観測した。

### 3. 結果及び考察、今後の展開等

PIXE による X 線スペクトルから電極に混入している不純物を同定した結果を図 1 に示す。ホウ素添加炭素電極は純炭素電極に比べて不純物混入があり、これは炭化ホウ素の粉体工程の際に混入することが分かっている。後継品の KM100 は、従来品の GB220 および GB210 と比較して大きな差異はないが、Ti と Cr が有意に増加し、新たに V のピークが見られた。おそらく粉体工程の変化によるものと考えられる。次に、製膜後のフォイルの X 線スペクトルの結果を図 2 に示す。高純度グラファイトである GTF に比べて J-HBC フォイルは不純物混入が避けられない。その中でも、KM100 から製膜した J-HBC フォイルは、電極で新たに見つかった V が依然としてフォイルにも混入していることが明らかになった。

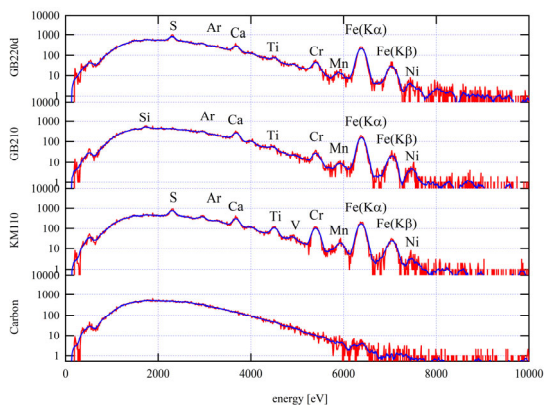


図 1. PIXE を用いた X 線スペクトル（ホウ素添加炭素電極の不純物同定）

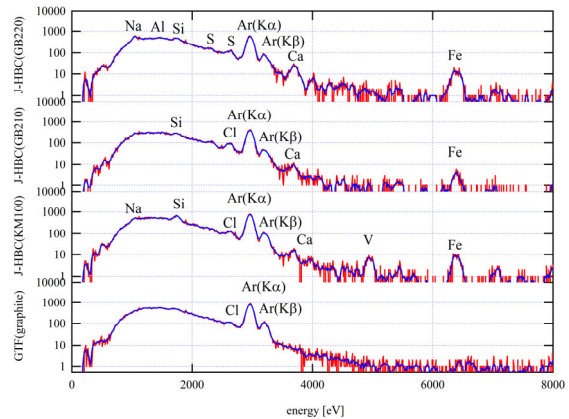


図 2. PIXE を用いた X 線スペクトル（蒸着フォイルの不純物同定）

RBS から求めた各フォイルの組成比を図 3 にまとめた。ホウ素 20%の GB220 から製膜したフォイル中のホウ素の割合が 36%あるのに対し、同 10%の GB210 と KM100 のフォイルはそれぞれ 30%と 25%となった。元々電極中の割合より多く含まれる傾向にあったが、電極の含有率が半分になっても、フォイル中のホウ素の割合はそれほど減ってはいない。しかし、その中でも KM100 は最もホウ素が少ないため、ビーム照射に対する耐久性に与える影響を確認することが重要になる。

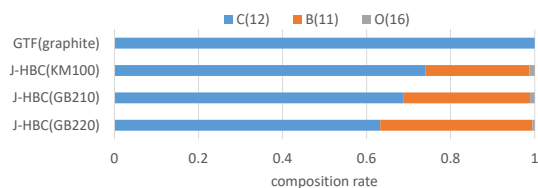


図 3. RBS から求めたフォイルの組成比

Ar ビーム照射試験を用いて、3 種類のフォイルの性能にどのような違いがあるかを調べた結果を以下に示す。ビーム電流が最小の 50nA で 60 分間照射した時のフォイル変化の様子を図 4 に示す。3 種類のフォイルとも破損することはなかったが、その変化の様子は大きく異なっていた。GB220 フォイルは、照射エリアが体積収縮することで鏡面化し、その周辺が引っ張られることで放射状のしわができており、これまでと同様の変化を再現している。一方、ホウ素の少ない GB210 フォイルと後継品の KM100 フォイルは、照射エリアにビーム痕が付くが、鏡面化までは至らず、周辺のしわもほとんど張っていなかった。これらのフォイルをビームラインから回収した後、フォイル照射跡にマイクロスコップを用いて高倍率での観察した結果を図 5 に示す。GB210 と KM100 の照射跡は黒っぽく焦げたような跡がみられた。この状態は以前の純炭素フォイル照射試験と似ており、そのことからホウ素添加量の減少が主な原因と考えられる。

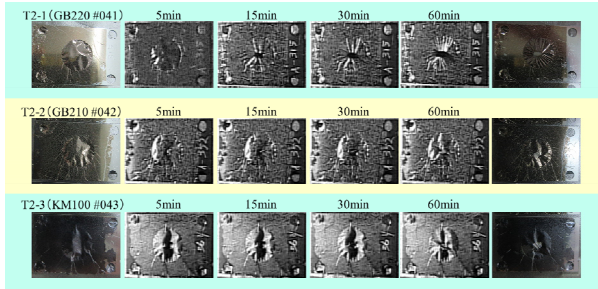


図. 4 Ar 照射によるフォイル変化の様子(50nA 時)

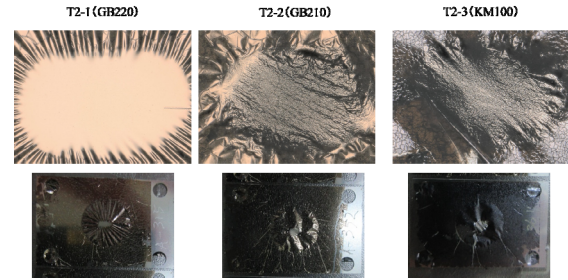


図. 5 フォイル回収後の高倍率での観察(50nA 時)

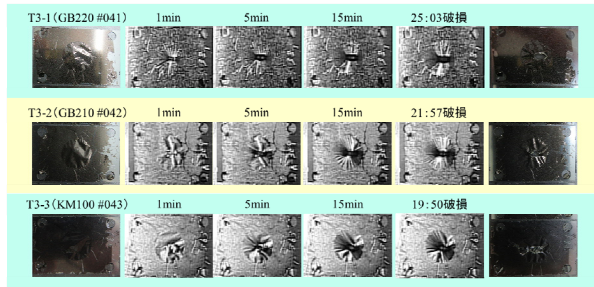


図 6. Ar 照射によるフォイル変化の様子(1 $\mu$ A 時)

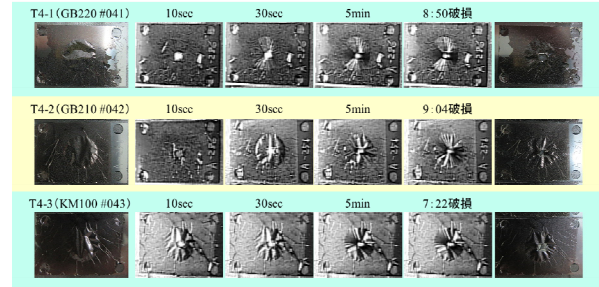


図 7. Ar 照射によるフォイル変化の様子(2 $\mu$ A 時)

次に、ビーム電流 1 $\mu$ A と 2 $\mu$ A で照射したときのフォイル変化の様子をそれぞれ図 6, 図 7 に示す。1 $\mu$ A 照射時はおおよそ 20 分前後で、2 $\mu$ A 照射時はおおよそ 8 分前後でフォイル照射部に穴が開いて破損していることが分かった。また、ビーム電流を増強して照射すると、GB210 と KM110 の両方とも最終的には照射部の鏡面化と周辺のしわ張りが発生し、最後に照射部に穴が開いて壊れている。つまり、ビーム照射による体積収縮とその変化の様子は GB220 では早く起こり、GB210 と KM110 はゆっくりでかつ変化率も小さいと考えられる。そのため、ビーム電流が 50nA でもさらに照射時間を延ばせば同様の結果になると考察できる。

最後に、ビーム電流に対するフォイルの寿命評価を図 8 にまとめた。グラフ中の○プロットはフォイルが破損することなく照射が完了した時間を、×プロットはフォイルが破損するまでの照射時間を示している。この結果を見ると、ビーム電流と照射時間はほぼ反比例しているように見え、フォイル寿命がビームの全照射量に依存していると推察される。また、3 種類のフォイルの寿命は、GB220, GB210, KM100 の順に短くなっているが、その差はそれほど大きくないことも分かった。これらの結果から、KM100 から作られたフォイルも実機用フォイルとして十分使える性能を有すると考えられる。ただし、KM100 フォイルが 1 $\mu$ A 照射時に 2 分程度で破損したのもあり、サンプルフォイル自体の個体差やフォルダーへの装着状況の違い、ビーム照射位置のずれ等による準備条件の差異による影響も大きい。またビーム条件の再現性も課題となることが分かった。3 種類のフォイルの正確な寿命評価のためには、フォイル状態とビーム条件の両方の再現性に注意し、サンプル数を増やして統計精度を上げた照射試験を来年度も継続する必要がある。

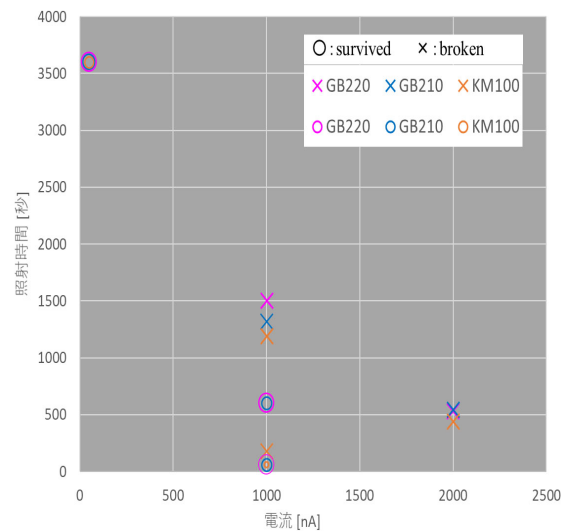


図 8. Ar 照射によるフォイル寿命のビーム電流特性