

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¹⁾ 仲野谷 孝充¹⁾ 山崎 良雄¹⁾ サハ プラナブ¹⁾

Masahiro YOSHIMOTO Takamitsu NAKANOYA Yoshio YAMAZAKI Pranab SAHA

金正 倫計¹⁾ 山本 春也²⁾ 岡崎 宏之²⁾

Michikazu KINSHO Shynya YAMAMOT Hiroyuki OKAZAKI

¹⁾原子力機構/J-PARC センター ²⁾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。従来から使用していた炭素電極(GB220 材)はホウ素が 20% 添加されたものであったが、供給メーカーの都合により廃番となった。代替品は KM100 材であるが、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た。また、今回、蒸着装置のオーバーホールによって蒸着時の放電の様子が変化し、その結果製作されたフォイルのカソード比が大きく上昇した。この放電の変化は電極位置の調整により解決しそれに伴いカソード比ももとに戻った。これら蒸着の違いによるフォイルの寿命評価を目的に、これまでの照射試験の整理も合わせて行った。その結果、KM100 フォイルは GB220 フォイルと遜色のない寿命を持っており、J-PARC の利用運転にも十分使用できることを示唆している。また、今回カソード比が大きく異なるフォイルについて、照射試験を実施したところ、寿命が大きく向上していることが明らかになった。このことを明らかにするためには、カソード比をコントロールする蒸着方法を開発し、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。

従来から使用していた GB220 材はすでに廃盤となり今後の入手は不可能であることから、昨年度から KM100 の評価試験を中心に照射試験を行ってきた。これまでの一連の結果から、GB220 フォイルに比べて KM100 フォイルの寿命はわずかに短い、実用上ほとんど問題ないレベルであることが確認できている。一方で、蒸着装置のオーバーホールに伴い、電極周辺の部品を交換したところ、製膜されたフォイルの様相が変わっていた。そこで今年度は、KM100 フォイルの寿命評価の精度を上げるとともに、製作年代の異なるフォイルの比較を中心に寿命評価試験を実施した

2. 実施方法

蒸着装置のオーバーホールは、2020年10月に実施した。それ以降、カソード比が大きく上昇してしまった。また、蒸着時にカソード電極に沿った放電が顕著に表れるようになっていた。そこで、2021年1月に電極の取り付け位置の調整を実施したところ、カソード電極の放電も落ち着き、カソード比は以前のレベルまで減少した。そこで、表1に示すように、期間Ⅰをオーバーホール前（フォイルロッド番号：～#37）、期間Ⅱをオーバーホール後から電極位置調整前まで（フォイルロッド番号：#38～#43）、期間Ⅲを電極位置調整以降（フォイルロッド番号：#49～）の3つの時間領域に分けて、フォイルの分析（ μ PIXE, RBS等）およびアルゴンビーム照射試験を実施した。フォイルの分析については、3つの期間の間で、大きな違いは見られなかった。アルゴンビーム照射試験のビーム条件は $Ar^+ \times 300kV$ で、 $\phi 1mm$ 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～2 μA と段階的に調整しながら、ビーム照射によるフォイルの劣化・破損過程を観測した。

表1. フォイルの生産時期によるカソード比の変化

	期間Ⅰ：オーバーホール以前	期間Ⅱ：オーバーホール後から電極位置調整前まで	期間Ⅲ：電極位置調整以降
フォイルロッド番号	#022～#037	#038～#043	#049～#058
カソード比の平均	0.091	0.51	0.042

また、今回はTIARAイオン注入器におけるビーム電流の調整方法について改めてここで整理する。イオン注入器では、イオン源で生成した Ar^+ イオンを引き出し、ビーム輸送ラインをとおって、照射チャンバーまで導く。イオン源では、ガス流量や可変スリットで、引き出すビーム電流量を調整できる。また、イオン源にはエネルギーアナライザー(EA)があり、イオン源で生成される多荷イオン(Ar^{2+}, \dots)を切り出している。またビームライン上には静電電極型のX-Yビームスキャナーがあり、下流のX-Y四方向スリットでアパーチャーを調整する。ビーム輸送ラインの収束系とスキャナーのふり幅、スリットのアパーチャーサイズを組み合わせ、下流のビーム電流量を調整している。最後に選択可能な固定スリットで照射ビームの形状を決定している。

ビーム電流の調整にはこれまでいくつかの問題点が明らかになった。ビーム電流を上げようとイオン源の調整をすると、ある条件では Ar^{2+} も同時に引き出されていることが分かった。これは、ビーム輸送ライン上のフライングワイヤー方式のビームプロファイルモニタ(BPM)でビーム分布が二山になることで Ar^{2+} の混在を判別できるため、 Ar^+ のみが透過するように注意する必要がある。また、ビーム電流を上げるためには、スリット位置でのビームサイズを絞るようにし、スキャン幅を小さくすればよいが、透過率を上げるためにこの調整を過剰にやりすぎると、照射位置でのビーム分布の一様性が悪くなり、局所的なビーム電流密度を上げる可能性があることが分かった。ビーム電流量に対するフォイル寿命を評価するためには、照射領域のビーム電流密度を一様にするのが重要であり、2021年6月でようやくビーム調整戦略が完全にフィックスできたが、それ以前のビーム調整では、照射位置にあるファラデーカップをみてビーム電流量を調整するのみだったため、フォイル寿命評価の観点からみたビームの品質には課題があった。実験結果の考察時には、この点を考慮する必要がある。

3. 結果及び考察、今後の展開等

これまでのTIARAにおける照射試験において、イオンビーム電流量とフォイルの照射寿命の相関を調べてきた。図1は2020年1月に測定した典型的な測定結果で、ビーム電流と照射寿命はほぼ反比例、つまりビーム電流と寿命時間の積がほぼ一定となっており、これはフォイル寿命がイオンビームの照射積算量に強く依存することを示唆している。一方

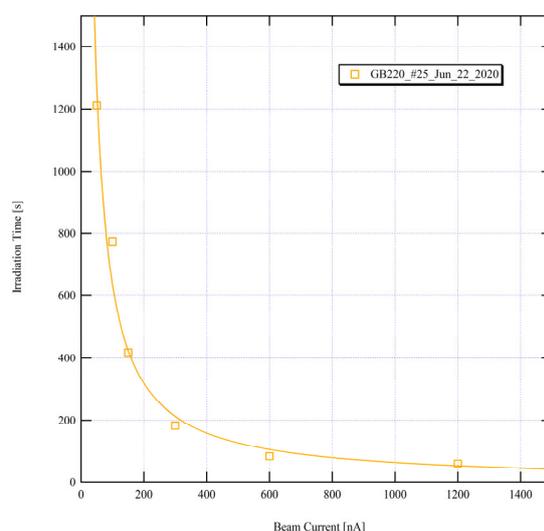


図1. イオンビーム電流と照射寿命の相関関係

で、フォイルの破損の仕方は照射条件によって大きく異なる。大きく分けると2つに分類でき、一つは照射領域が変質してやがて穴が開くもの、もう一つは照射領域が収縮してフォイル周辺部を引っ張り、固定しているフレームとの境界で亀裂が入って破れるもの、である。実際には2つの破損方式の複合が生じており、フォイルの製作状況やフレームへのマウント状況、フォイル上のビーム照射位置やビームの形状など、様々な要因によって大きく異なる。この点については、後ほど改めて検討する。

照射試験の結果を比較する前に、3つの期間に製作したフォイルの分析結果について簡単にまとめる。図2は μ -PIXEを用いたフォイル内の不純物混入の評価結果を比較したもので、これまでと同様にバックグラウンドのAr以外に目立ったピークはなく、不純物がほとんどないことが確認した。また、図3はRBSにより解析して算出した炭素、ホウ素、酸素の組成比を比較したもので、カソード比の違いに依る組成比の大きな変化が無いことを確認した。これらのフォイル分析からは、3つの期間で製作したフォイルについては、ほとんど違いは無いように見える。

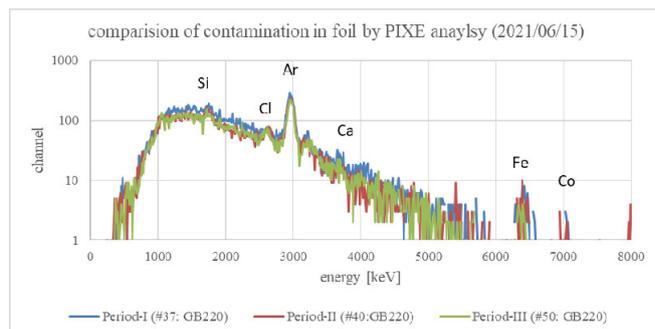


図 2. PIXE による不純物評価

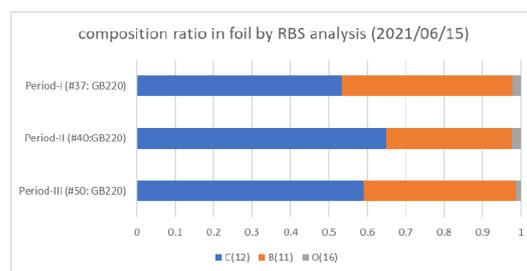


図 3. RBS による組成分析

次に、アルゴン照射によるフォイルの製作時期の違いについて、詳細に確認する。先ほどの2020年1月の照射試験結果をリファレンスとして、以降の照射試験の結果を改めて整理した。まず従来品の電極GB220を用いたフォイルについてまとめたものを図2の左にまとめた。プロットの色は実験日毎に分けており、プロット形状でフォイル製作時期を指標した（期間Ⅰ：□、期間Ⅱ：○、期間Ⅲ：△または▽）。まず全体の傾向としてみると、期間Ⅲについては、ばらつきが大きいものの、全体的にリファレンスの期間Ⅰのプロットとおおむね一致している。一方で、期間Ⅱはビーム照射に対するフォイル寿命は大幅に向上していることが明らかになった。

次に各実験日ごとに詳細にみると、期間Ⅲの2021年11月の#56のプロット（青色の△プロット）は低電流ビームの照射の際はリファレンスよりも寿命が長い傾向を示しているが、大電流ビームの照射では寿命が短くなる傾向を示している。これは、ビーム電流の調整方法が主要な要因と考えている。この時のビーム調整は、低電流モードを作る際は、スキャン幅を大きく振る一方で、大電流ビームを作る際は、スキャン幅を短く（もしくは0に）している。そのため、低電流モードでは大幅にビーム電流密度が減少する一方、大電流モードでは、ビーム電流密度が照射エリアの中で極端に大きくなった可能性が高く、局所的な照射積算量が大幅に上昇したために早期にフォイルの破損につながったと考えている。また、期間Ⅱについては、リファレンスプロットよりもフォイル寿命が大幅に大きくなる傾向を示している。ここでも、2021年3月の#41のプロット（ピンク色の○プロット）は2021年1月の#41（水色の○プロット）や2021年12月の#41（赤色の○プロット）と比べて少し低くなっているが、これもビーム電流の調整方法が主な原因と考えている。2021年3月はスキャンをせずにビーム調整を行ってしまったために、照射領域でのビーム分布の一様性が悪くなったため、寿命評価として悪くなったように見えたと考えている。

GB220の照射結果についてまとめると、ビーム調整に依存するずれを考慮しても、期間Ⅱは期間ⅠおよびⅢと比べて大きく寿命が向上していることが分かった。フォイル分析からみて、全ての期間で大きな違いは見られず、現状では期間Ⅱのフォイルでの特異点はカソード比として顕れているのみである。これまでHBCフォイルに関してカソード比はそれほど重要ではないと考えていたが、今回の結果は、それに反してHBCフォイルでもカソード比もフォイル寿命には重要なパラメータになることを示唆している。

同様に、後継品のKM100を用いたフォイルに対する同等のビーム照射条件の照射試験は期間Ⅲのみであったが、その結果を図2の右のグラフに示す。KM100フォイルの照射電流量に対する傾向はGB220フォイルとほとんど同じ結果を示し、且つリファレンスとしているGB220フォイルの寿命と比べてもほぼ同等の寿命を持っていることも明らかになった。

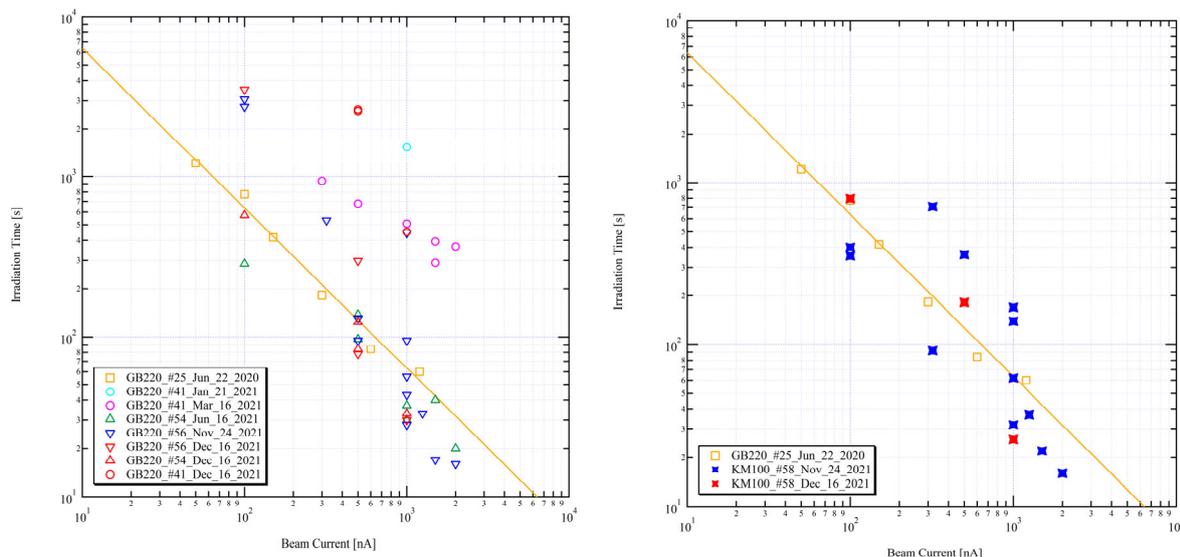


図2. フォイル製作ロッドによる電流-寿命相関の変化のリファレンス (GB220 (#25)@1/25, 2020) との比較

(左 : GB220、右 : KM100)

今回、これまでの TIARA における一連の照射試験をまとめた。その結果、Ar 照射の結果より電極 KM 材は GB 材と同程度の寿命があることと評価できた。これは今後、KM 材を主体としてフォイル製作を行っていく上で重要な確認であり、これは J-PARC の利用運転を継続する観点からとって大きな成果である。また HBC フォイルもカソード比が大きなキーパラメータになっていることが明らかになったことも今後の高性能フォイルの開発において重要な結果である。カソード比をコントロールする蒸着方法を検討し、改めて寿命評価をする必要がある。また、冒頭でも言及したように、フォイルの破損には2つのタイプがあり、この混在が照射に対する寿命評価について大きな誤差を生じさせている。フレームの形状や材質、フォイルのマウント方法などを改めて検討しなおし、フォイルとフレームとの境界からの破れによる破損がなるべく生じさせないような実験体系を構築すると同時にサンプル数を増やしての試験を継続する必要がある。さらに、今回は、ビーム調整戦略が非常に重要なことが明らかになった。これまでビーム電流値のみを指標としてビーム調整を行っていたが、ビーム調整条件によってはフォイル照射エリアでの電流密度の分布が大きく異なり、寿命評価としては不適切な結果を生じさせた。本来ならビーム電流を調整した後に、照射位置でのビームプロファイルが測定できれば理想的であり、そのためのモニタ系が追加されることを強く希望する。