

荷電変換薄膜の高性能化に向けた研究

Study on advanced charge exchange foil

吉本 政弘¹⁾ 仲野谷 孝充¹⁾ 山崎 良雄¹⁾ サハ プラナブ¹⁾ 金正 倫計¹⁾
山本 春也²⁾ 岡崎 宏之²⁾

Masahiro YOSHIMOTO Takamitsu NAKANOYA Yoshio YAMAZAKI Pranab SAHA Michikazu KINSHO
Shunya YAMAMOTO Hiroyuki OKAZAKI

¹⁾原子力機構/J-PARC センター ²⁾量研

（概要）

J-PARC 3GeV シンクロトロンにおいて荷電変換薄膜として使用している 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蒸着法で製膜している。昨年度に引き続き、カソード電極とアノード電極において純炭素棒とホウ素添加炭素棒の組み合わせを変えた4種類の照射用サンプルフォイルを作製した。RBS による組成分析の結果、炭素とホウ素の存在比の傾向は前回とほぼ同じであることが確認できた。また、XPS による化学結合状態を調べた結果、カソード電極由来のホウ素は電極に添加する前の B₄C の状態を維持しかつ点状に存在しているのに対し、アノード電極由来のホウ素は一度 B の原子状態にまでばらばらにされ、炭素または酸素と結合して広く分布して堆積していることが分かった。HBC フォイルにおいて、状態の違うホウ素のどちらが耐ビーム寿命の向上に貢献しているかを調べるために、アルゴンイオンビームによる照射試験を行った。しかし、試験結果は前回までの結果と大きく異なっており、引き続き照射試験を継続して検証を進める必要がある。

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、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を解明し、その結果を薄膜製作にフィードバックすることでさらにビーム照射に対し強い耐性を持つ高性能化を実現させることである。これまで、JAEA 東海サイトで新たに製作を開始した J-HBC フォイルに対する性能評価試験を、TIARA イオンビームを用いた照射試験や分析を通じて、オリジナルの HBC フォイルと同等の耐ビーム性能を有することを確認した後、J-PARC 加速器の利用運転で使用し、500kW 利用運転で数か月問題なく使えることを実証した^[1]。次のステップとして、HBC フォイル内におけるホウ素がフォイルの長寿命化にどのように貢献しているかを明らかにすることを目的として、カソード・アノード電極において純炭素棒またはホウ素添加炭素棒の組み合わせを変えたフォイルを作製し、アルゴンビーム照射試験及び分析評価試験を実施した。

2. 実施方法

HBC フォイルは、アーク放電法による真空蒸着法を用いて製作しており、炭素電極にホウ素を添加することで耐ビーム寿命を大幅に向上した。使用するホウ素添加炭素電極は、炭化ホウ素(B₄C)と炭素の粉体を混合・成形し、焼結して作っている。アーク蒸着法では、カソード電極由来の数 100nm のマクロクラスタとアノード電極由来の数 nm のミクロクラスタが混合・堆積して製膜している。前回の TIARA での照射試験では、カソードおよびアノード電極から飛来するホウ素の役割が異なっていることを示唆する結果が得られた。そこで前回と同様に、カソードおよびアノード電極を(1)両方ともホウ素添加炭素電極、(2)純炭素電極とホウ素添加炭素電極、(3)ホウ素添加炭素電極と純炭素電極、そして新たに(4)両方とも純炭素電極の4種の組み合わせでサンプルフォイルを作製しイオン注入器を用いた照射試験を実施した。ビーム条件は、イオン種:Ar⁺、エネルギー:300keV、スリット:φ1mm (ビームサイズ:2mm×4mm)、ビーム電流:50nA、であった。また照射時間を10、15、30、60、120分とし、照射量に応じた分析ができるようにした。同時に、未照射フォイルの組成分析を実施するために、シングルエンド加速器において3MVの陽子ビームを用いたRBS(Rutherford backscattering)法を実施した。また、今回はXPS(X-ray Photoelectron

Spectroscopy)法を用いて、ホウ素の化学結合状態を調査し、それによってカソードおよびアノード電極から飛来するホウ素の状態について考察した。

3. 結果及び考察、今後の展開等

Ar ビーム照射試験の結果と、比較のための前回の結果を合わせたものを図1に示す。(1)のサンプルでは、これまで通り照射後10~15分程度で、照射領域の鏡面化と周辺の放射線状のしわができる。ビーム照射によってフォイル内部に発生する張力が大きく、30分を過ぎるとフレーム端部で亀裂が発生しやすいことがわかる。また、120分照射したサンプルでは、亀裂は発生しなかったが、照射領域の中心部（写真の灰色部）に多量のピンホールが開いていた。この照射サンプルはフォイル破損機構の解明に重要な役割を果たすと期待しており、分析方法・分析手順についての検討を進めている。(2)のサンプルでは、前回と同様に照射後15分くらいまでは照射痕が付く程度で大きく変化しないが30分前から照射部の鏡面化と周辺の放射線状のしわが発生する。この変化の進行が遅いことから、耐ビーム性能に優れていると期待したのだが、120分照射サンプルでは、1時間を少し超えたあたりで照射部に穴が開いた。これは、照射領域の端部で亀裂が発生し、めくれ上がったためにできた穴であった。今回と前回とで大きく異なったのが(3)のサンプルであった。前回は鏡面化と放射線状のしわができていたが、今回は照射痕が付くだけで鏡面化も放射線状しわも発生しなかった。照射部には削られて薄くなったような痕が残っていた。また、(4)のサンプルも予想と大きく異なる結果である。昔の照射試験の結果によると純炭素フォイルはHBCフォイルに比べてはるかに短い時間で破損することが示されている^[2]。しかし、今回はフレーム端部での亀裂が発生する場合もあるが、照射部の破損は見られなかった。また放射線状のしわもほとんど発生せず、120分照射しても照射部の破損は見られなかった。今回の照射試験は、今までの試験結果からの予想と大きく外れる結果となった。構造分析等の詳細な評価試験を進めるだけでなく、寿命評価を行うためにはサンプル数を増やし統計精度を高める必要性を痛感した。

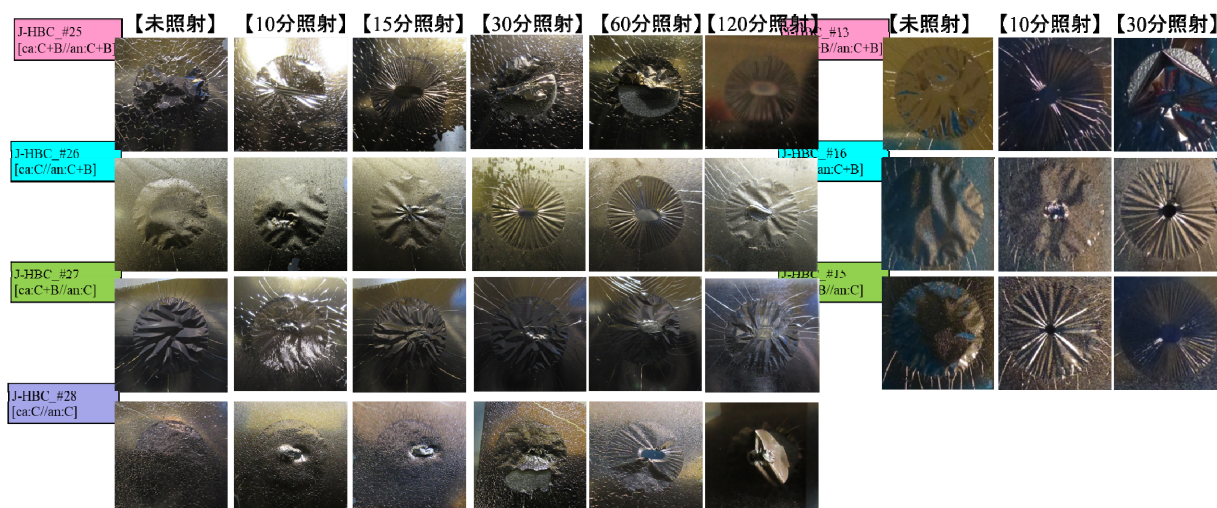


図1. Ar 照射によるフォイル変化の様子 (左：今回 | 右：前回)

今回の予想と大きく異なる照射試験の結果を見たとき、初めにサンプルの取り間違いを疑った。そこで、RBSによる組成分析の結果に対して、前回との比較を行った。比較結果を図2に示す。J-HBCフォイルではカソード比（両電極の消費量に対するカソード電極の消費量の比率）が0小さいため、カソード電極よりもアノード電極からの放出量が多い。そのためホウ素の存在比に着目すると、カソード・アノード電極のどちらにホウ素が添加されていたかの判断ができる。前回も今回もサンプル(2)がサンプル(3)よりもホウ素の存在比が高いことから、サンプルの取り間違いはなかったことは明らかであった。しかし、前回と比べて今回製作したフォイルは(1)~(3)の全てにおいて炭素に対してホウ素の存在比が高くなっている。しかも、スペクトル分布の幅が広いことから膜厚が厚くなっていると示している。成膜時の秤量結果は、前回と今回とでほとんど同じだった。RBSから求めた膜厚の違いについて引き続き原因調査を進めている。

次に、今回製作した4種類のサンプルフォイルの内、未照射フォイルに対して、XPS法による化学結合状態を調べた。測定結果を図3に示す。ワイドスキャン（定性分布）から炭素、ホウ素、酸素の3種類を主として構成していることがわかる。次に、炭素[C1s]およびホウ素[B1s]のナローズキャン（高分解能分布）から化学結合状態についてみる。その結果、サンプル(3)および(4)には B_2C およびB-B結合状態は殆ど存在していないことがわかる。この結果から、カソード電極由来のホウ素が電極に添加した B_2C の粒形がその

まま飛来しているのに対し、アノード電極由来のホウ素は一度原子の状態に分解された後に、新たに炭素や酸素と結合していることが分かった。また、これまでの TEM 観察結果と合わせて考察すると、数 100nm 程度で点在しているグレインの正体がカソード電極から飛来した炭化ホウ素 (B_4C) の粒形で、アノード電極から飛来した分解された単体ホウ素 (B) が周辺のマトリクス部で炭素と結合していると考えられる。このホウ素の結合の仕方および分布の違いが、アルゴンビーム照射試験での結果に反映していると考えられる。

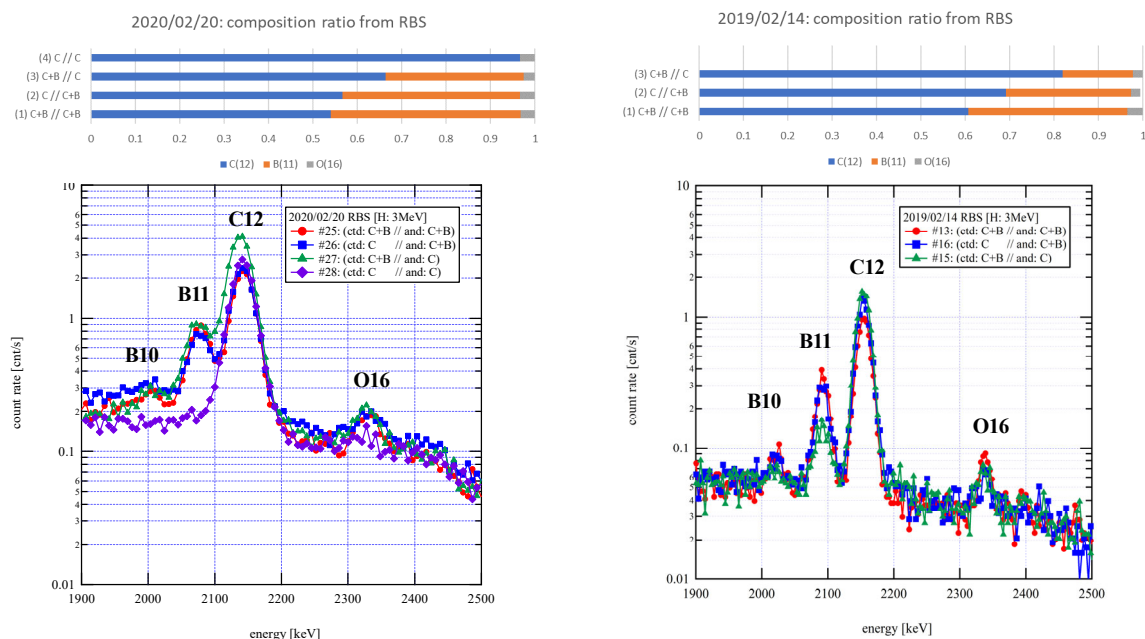


図2. RBSによる組成分析 (左: 今回 | 右: 前回)

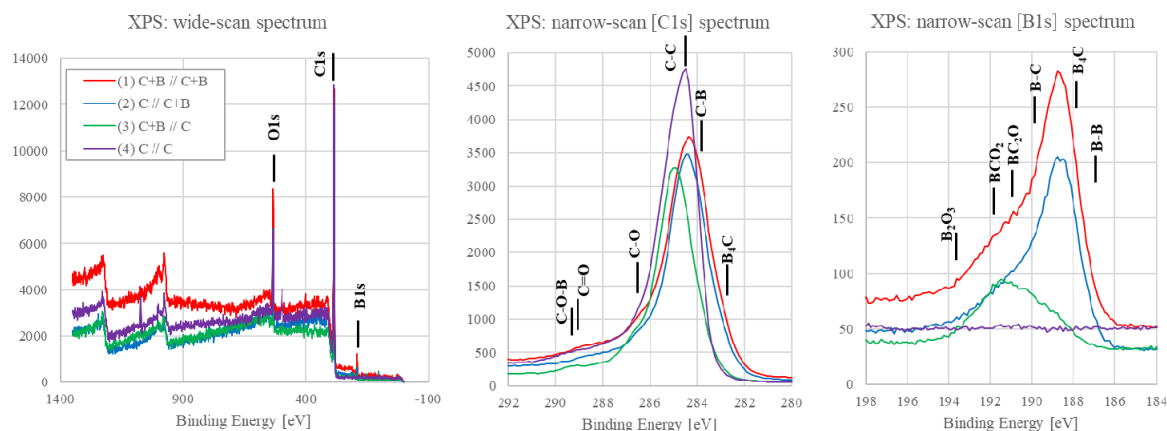


図 3. XPS 法による定性分析および化学結合状態分析

今回の課題申請における試験結果から、カソードとアノード電極から飛来するホウ素の化学結合状態と分布の仕方が異なっていることが明らかになった。ホウ素の添加により大きく性能向上を果たした HBC フォイルにおいて、カソード電極由来のグレインで点在する炭化ホウ素 (B_2C) とアノード電極由来のマトリクスに広く分布し炭素 (C) および酸素 (O) と結合している単体ホウ素 (B) のどちらが支配的なのかを調べるために、再現性の高い蒸着方法を確立すること、そしてサンプル数を増やして統計精度を高めた照射試験を継続して検証を進める。

4. 引用(参照)文献等

- [1] M. Yoshimoto, et. al., “Progress status in fabrication of HBC stripper foil for 3-GeV RCS at J-PARC in Tokai site”, EPJ Web conf. 229, 01001(2020)
- [2] Y. Yamazaki, et. al., “FIRST STEP ANALYSIS OF HYBRID TYPE BORON-DOPED CARBON STRIPPER FOILS FOR RCS OF J-PARC”, Proc. of IPAC10(2010) THPEB019 pp3924-3926