

J-PARC 加速器向けに製作したホウ素含有炭素製荷電変換薄膜の 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⁾ 山本 春也²⁾
Masahiro YOSHIMOTO Takamitsu NAKANOYA Shunya YAMAMOTO

¹⁾原子力機構/J-PARC センター ²⁾量研

(概要)

J-PARC で使用する荷電変換薄膜の長寿命化を目的として、アーク放電法で製膜した炭素薄膜の Ar ビーム照射寿命とカソード比の関係を調査した。カソード電極径を固定し、アノード電極径を変化させることでカソード比を制御した純炭素薄膜を製膜し、複数試料による再現性試験を実施した。

その結果、アノード電極径を大きくすることでカソード比を制御でき、カソード比 0.5 以上で照射寿命が向上することを確認した。また、昨年度より寿命が短くなった原因を調査したところ、照射ビーム面積が小さくなり、電流密度が約 2 倍に増加していたことが判明した。照射面積で補正した結果、昨年度と高い再現性が得られた。さらに、HBC 薄膜も純炭素薄膜と同様の寿命特性を示した。

キーワード：大強度陽子ビーム、荷電変換炭素薄膜、直流アーク蒸着法

1. 目的

本研究の目的は、J-PARC 内部で製膜している荷電変換薄膜について、ビーム照射による耐久寿命を評価するとともに、劣化・破壊に至るメカニズムを解明し、その結果を製膜時のパラメータにフィードバックすることで、さらなる性能向上を目指すことである。

現在、J-PARC では、KEK で開発されたホウ素添加炭素薄膜（HBC : Hybrid type thick Boron-doped Carbon [1]）から純炭素薄膜への移行を進めている。その主な理由は、①炭化ホウ素を添加した炭素電極の供給が先細りしていること、②HBC 薄膜においてもカソード比が低い場合には照射寿命が大幅に短くなること、③純炭素薄膜においても加速器運転に必要な膜厚を実現できたこと、の 3 点である。また、J-PARC では、アーク放電に用いるカソード・アノード電極の径を調整することにより、カソード比を容易に制御できる手法を開発した。これまでの結果から、純炭素薄膜においても HBC 薄膜と遜色のないビーム照射耐性を実現できることが分かってきた。

アーク放電法で製膜された炭素薄膜は、主にカソード電極のアークスポットから放出されたマクロ粒子（クラスター）と、アノード電極が電子照射によって加熱されることで蒸発したマイクロ粒子（ナノ粒子）が混合した組織を有する。これら 2 種類の粒子の混合割合を最適化することで、優れた膜強度と長寿命化が実現されている。しかし、薄膜中におけるマクロ粒子とマイクロ粒子の混合割合を直接かつ正確に測定することは困難である。KEK の菅井博士は、カソード電極とアノード電極の減損量の比を両者の混合割合に相関するパラメータとして捉え、カソード比（カソード電極の減損量を両電極の減損量の和で割った値）を定義した。そして、炭素薄膜の寿命との間に一定の規則性があることを見出している。

一方、我々は、カソード電極とアノード電極の径の比を調整することで、カソード比を容易に制御できることを示した。また、カソード比を高くすることで炭素薄膜の寿命が長くなることを、昨年度の実験結果として報告した[2]。しかし、この結果は、菅井博士による先行研究で示された規則性とは異なる傾向を示していた。そこで、測定精度の向上と結果の信頼性を高めることを目的として、サンプル数を増やした再現性試験を実施した。

2. 実施方法

R07 年度も、炭素薄膜のビーム照射寿命の調査に焦点を当て、イオン注入器を用いた Ar ビーム照射試験を実施した。実験には、IA1 ポートに設置された低エネルギーイオン照射チャンバーを使用

した。ビーム条件は、イオン種を Ar^+ 、エネルギーを 300 keV とし、 $\phi 1\text{ mm}$ のスリットを用いて、ビームサイズがおおよそ $2\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ の楕円状となるように調整した。ビーム電流は $1\text{ }\mu\text{A}$ に固定した。ビーム照射による炭素薄膜の変形を観察し、破損に至るまでの時間を計測することで照射寿命を評価した。

今年度の実験は、前半期の 4 月 8～11 日と後半期の 9 月 24～26 日に計画された。前半期には、R06 年度に実施した試験の再現性評価を行った。カソード電極径を 10 mm に固定し、アノード電極径を変化させることでカソード比を制御した純炭素薄膜を製膜し、ビーム照射寿命の違いを調査した。

後半期には、HBC 薄膜におけるカソード比依存性を調べる照射試験を予定していた。現在、ホウ素添加炭素材の新規入手が困難であるため、在庫している直径 10 mm のホウ素添加電極材をカソード電極として使用し、電極径を変えた純炭素材をアノード電極に組み合わせることで、カソード比を制御した HBC 薄膜を製膜する計画であった。この方法では、カソード比だけでなく薄膜中のホウ素添加率も変化するため、ビーム照射寿命に対するホウ素添加の影響についても知見が得られると期待された。しかし、高圧電源の故障により 300 kV でのビーム引き出しが困難となったため、後半期の実験は中止となった。この試験については、次年度以降に改めて実施する予定である。

前半期に準備した炭素薄膜のリストを表 1 に示す。測定誤差の影響を低減し、結果の信頼性を高めるため、各製膜 ID についてサンプル数を 5～6 枚に増やして測定を行った。⑧の HBC 薄膜は、かなり以前に製膜されたものであり、カソード電極とアノード電極がともに直径 10 mm であるにもかかわらず、高いカソード比を実現していた試料である。

また、炭素薄膜への照射前後にカプトンシートにもビームを照射することで、照射ビームの二次元プロファイルを記録した。

3. 結果及び考察、今後の展開等

図 1 は、カソード電極径を 10 mm に固定し、アノード電極径を 10 mm から 45 mm まで変化させて製膜した炭素薄膜について、カソード比をプロットしたものである。カソード電極に対してアノード電極の径を大きくすることで、アノード電極の熱容量が増加し、アーク放電時の温度上昇を抑制できる。その結果、アノード電極からの炭素放出量を抑制でき、カソード比を制御できることが分かる。

これらの炭素薄膜を用いて、昨年度と同様に Ar ビーム照射による寿命評価試験を実施した。その結果、照射寿命のカソード比依存性は昨年度と同様の傾向を示したものの、全体的に寿命が短くなる結果となった。今年度と昨年度の実験条件の違いを詳細に調べたところ、照射ビームの二次元プロファイルが大きく異なっていることが分かった。

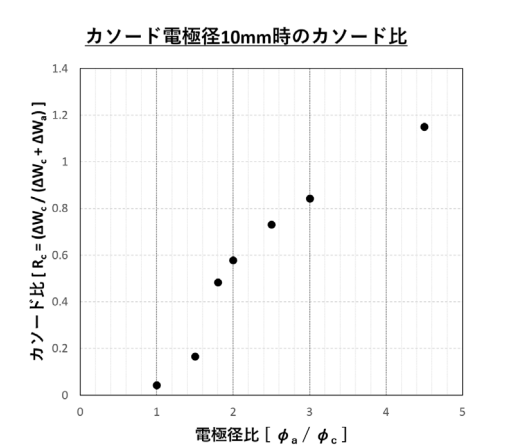


図 1. カソード比の電極比依存性

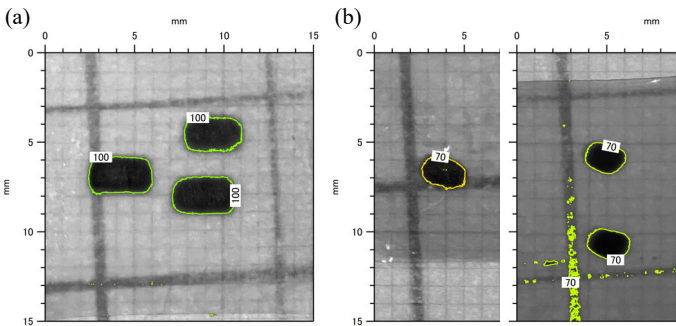


図 2. カプトンテープに焼き付けたビーム照射痕

(a) R7 年 1 月: $6.116 \pm 0.6487\text{ mm}^2$

(b) R7 年 4 月: $3.093 \pm 0.1722\text{ mm}^2$

図2は、昨年度および今年度にカプトンシートに記録したビーム照射痕を示したものである。これらを画像解析した結果、ビーム照射面積は昨年度の $6.116 \pm 0.6487 \text{ mm}^2$ から今年度は $3.093 \pm 0.1722 \text{ mm}^2$ へと大幅に減少していた。そのため、同じビーム電流 $1 \mu\text{A}$ であっても、電流密度は $0.164 \mu\text{A}/\text{mm}^2$ から $0.323 \mu\text{A}/\text{mm}^2$ へと約2倍に増加していることが分かった。この電流密度の増加が、今年度の照射寿命の短縮の主要因であると考えられる。

これまでの照射試験の結果から、TIARAにおけるArビームによる炭素薄膜の寿命は総照射量に支配されており、ビーム電流密度の違いによる温度上昇等の影響は比較的小さいことが分かっている。そこで、今年度の結果をビーム照射面積で補正し、昨年度の結果と比較した。その結果を図3に示す。補正後の結果は昨年度の結果と非常によく一致し、高い再現性を確認することができた。

また、HBC薄膜については1例のみではあるものの、その結果が純炭素薄膜の結果とよく一致していることも明らかになった。これらの結果から、以下の2点が明らかになった。

- アノード電極径をカソード電極径よりも大きくすることで、カソード比を制御できる。
- カソード比を0.5以上とすることで、炭素薄膜の長寿命化を実現できる。

また、炭素薄膜が破損する直前の表面状態を図4にまとめた。カソード比によって照射寿命は大きく異なるものの、破損直前の表面状態にはほぼ共通した特徴が見られた。すなわち、ビーム照射部が鏡面化するとともに体積収縮が生じ、その周辺部に発生する張力によって放射状のしわが形成される。

今回の試験では、張力の増大によってフレームとの境界部から亀裂が発生するような破損は見られず、すべての試料で照射部そのものが欠損する形態で破損した。このことから、今回の試験では、フレームとの接合状態等の影響を受けることなく、薄膜そのものの照射寿命を比較的に純粋に評価できたと考えている。

また、これらの結果を比較すると、カソード比やホウ素添加の有無にかかわらず、ビーム照射によって薄膜が破損に至る基本的なメカニズムは共通していると推察される。一方で、同様の破損形態を示すにもかかわらず、照射寿命が大きく異なる原因については、現時点では明らかになっていない。

これまでに実施した照射中のTEM観察では、結晶粒（マクロ粒子）の周辺に存在する母相において結晶化が進行し、ピンホールが発生する現象が観察されている。カソード比が低い場合には、この母相領域が増加し、結晶化およびピンホール形成が促進される可能性が考えられる。

今後は、この仮説を検証するため、照射中のTEM観察を改めて実施する。照射中の観察が技術的に困難な場合には、照射時間を細かく制御して異なる照射量の試料を作製し、それらについてTEM観察を行うことで、照射による組織変化と破損に至る過程を詳細に調査する予定である。

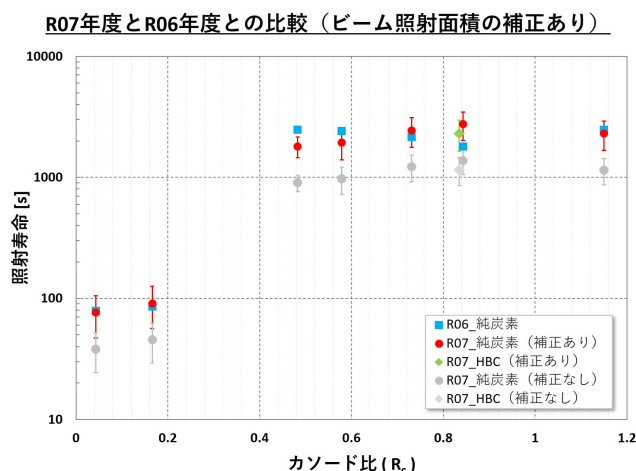


図3. 炭素薄膜の照射寿命におけるカソード比依存性

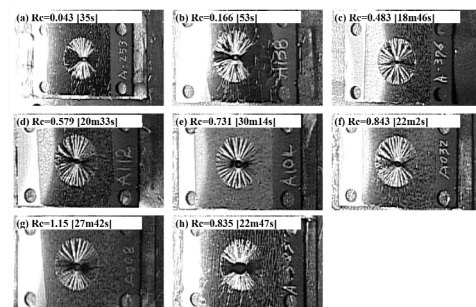


図4. 薄膜破損直前の表面の様子

(a)~(g) 純炭素薄膜

(h) HBC 薄膜

4. 引用(参照)文献等

- [1] 菅井勲, 「重イオン加速器用荷電変換炭素薄膜の開発 長寿命・高強度への挑戦」, 日本物理学会誌 43 (1988) 44.
- [2] T. Nakanoya et al., Proceedings of the 22nd Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Aug. 6- 8, 2023, Tokyo, Japan, pp.790-794.